



Contrôle cohérent des états électroniques d'une boîte quantique unique

Alexandre Enderlin

► To cite this version:

Alexandre Enderlin. Contrôle cohérent des états électroniques d'une boîte quantique unique. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2010. Français. NNT: . tel-00530599

HAL Id: tel-00530599

<https://theses.hal.science/tel-00530599>

Submitted on 29 Oct 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.

Université Pierre et Marie Curie - Paris VI
ED 107 Physique de la région parisienne

THÈSE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris VI

présentée par

Alexandre ENDERLIN

**Contrôle cohérent des états
électroniques d'une boîte quantique unique**

Soutenue publiquement le 29 juin 2010 devant le jury composé de :

M.	Philippe BOUCAUD	<i>Rapporteur</i>
M.	Jean-Michel GERARD	<i>Examineur</i>
M.	Roger GROUSSON	<i>Examineur</i>
M.	Carlo PIERMAROCCHI	<i>Examineur</i>
M.	Jérôme TIGNON	<i>Examineur</i>
M.	Paul VOISIN	<i>Rapporteur</i>
Mme	Valia VOLIOTIS	<i>Directrice de thèse</i>

Institut des NanoSciences de Paris - CNRS UMR 7588

Sommaire

Introduction	7
1 Boîtes quantiques semi-conductrices	11
1.1 Présentation	12
1.1.1 Fluctuations d'interface de GaAs sur AlGaAs	14
1.1.2 Boîtes quantiques auto-organisées d'InAs sur GaAs	15
1.2 Structure électronique des boîtes quantiques	15
1.2.1 Rappels de la structure de bandes du semi-conducteur massif	15
1.2.2 Boîtes quantiques	18
1.2.2.a Calcul des fonctions d'onde en première quantification	18
1.2.2.b Traitement de l'interaction coulombienne en seconde quantification	20
1.2.3 Transitions optiques	22
1.3 Structure fine de la paire électron-trou dans une boîte quantique asymétrique	25
1.4 Mesure du temps de vie	30
1.4.1 Principe des mesures	30
1.4.2 Excitation résonnante	32
1.4.3 Excitation non résonnante	32
2 Échantillons pour l'optique guidée	39
2.1 Enjeux de l'optique guidée	40
2.2 Boîtes quantiques issues de fluctuations d'interfaces	42
2.2.1 Structure	42
2.2.2 Propriétés optiques du guide d'onde	44
2.2.3 Extraction de la luminescence	46
2.3 Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par <i>MBE</i>	49
2.3.1 Structure	49
2.3.2 Propriétés optiques du guide d'onde	51
2.3.3 Extraction de la luminescence	54
2.4 Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par <i>MOCVD</i>	55
2.4.1 Structure	55
2.4.2 Propriétés optiques des guides d'onde	57
2.4.3 Extraction de la luminescence	58

3	Montage expérimental	65
3.1	Schéma général du montage	66
3.2	Cryogénie	67
3.3	Source laser	70
3.4	Microscopie	74
3.4.1	Élargisseur de faisceau	74
3.4.2	Imagerie de la surface de l'échantillon	76
3.5	Sélection spatiale de la luminescence	77
3.6	Spectroscopie et détection	78
3.6.1	Spectromètre et caméra <i>CCD</i>	79
3.6.2	<i>Streak Camera</i>	80
3.7	Mesure de la cohérence quantique	82
3.7.1	Résolution du <i>splitting</i> d'échange avec l'interféromètre de Fabry-Pérot	83
3.7.1.a	Champ monochromatique	83
3.7.1.b	Trains d'ondes	85
3.7.2	Interféromètre de Michelson pour le contrôle cohérent	91
3.7.2.a	Schéma général du montage	92
3.7.2.b	Dédoublage d'une impulsion	93
3.7.2.c	Contrôle de la différence de phase des deux impulsions . .	95
3.7.2.d	Stabilité de l'interféromètre	97
4	Interaction lumière-matière : oscillations de Rabi	101
4.1	Description de l'interaction	102
4.1.1	Couplage lumière-matière	102
4.1.2	Opérateur moment dipolaire	103
4.1.2.a	Forme de l'opérateur	103
4.1.2.b	Moyenne quantique	104
4.1.2.c	Écart-type	105
4.1.3	Système isolé	105
4.1.3.a	Équation de Schrödinger du système à deux niveaux . . .	106
4.1.3.b	Opérateur densité	109
4.1.4	Système en interaction avec son environnement	109
4.1.5	Interprétation des temps de relaxation	110
4.1.6	Équations de Bloch optiques	111
4.1.6.a	Utilisation de la matrice densité et des équations de Bloch optiques	111
4.1.6.b	Les trois approximations	112
4.1.6.c	Énoncé des équations	114
4.2	Excitation continue	115
4.2.1	Solutions des équations de Bloch optiques	116
4.2.2	Fluorescence de résonance d'un émetteur unique	117
4.3	Excitation impulsionnelle	119
4.3.1	Lien entre les oscillations de Rabi en fonction du temps et de la puissance	119

4.3.1.a	Résolution de l'équation de Schrödinger en régime d'excitation pulsée	119
4.3.1.b	Évolution de la population sous une impulsion sécante hyperbolique	123
4.3.1.c	Oscillations de Rabi en fonction de l'aire de l'impulsion . .	125
4.4	Résultats expérimentaux	128
4.4.1	Échantillon A	128
4.4.1.a	Oscillations de Rabi	128
4.4.1.b	Calcul du moment dipolaire de la transition fondamentale	129
4.4.2	Échantillon B	132
4.4.2.a	Oscillations de Rabi	132
4.4.2.b	Oscillations de Rabi et laser contra-polarisés	135
5	Contrôle cohérent	141
5.1	Objectif d'une expérience de contrôle cohérent	142
5.1.1	Manipulation d'un état	142
5.1.2	Mesure des constantes de relaxation	143
5.2	Décohérence : lien entre représentation en kets et matrice densité	143
5.3	Interaction du système à 2 niveaux avec 2 impulsions successives	146
5.3.1	Définitions	146
5.3.1.a	Déphasage entre deux impulsions	146
5.3.1.b	Aires des impulsions	147
5.3.2	Dynamique du système	147
5.3.2.a	Découpage en 4 étapes	147
5.3.2.b	Résolution des équations de Bloch gouvernant l'évolution lors de l'étape $n^{\circ} 3$	150
5.4	Mesure du temps de cohérence	154
5.4.1	Principe de la mesure	154
5.4.2	Résultats expérimentaux	157
5.4.2.a	Échantillon A	157
5.4.2.b	Échantillon B	161
5.5	Mesure du temps de vie	163
5.5.1	Principe de la mesure	163
5.5.2	Résultats expérimentaux	164
5.5.2.a	Échantillon A	164
5.5.2.b	Échantillon B	166
5.6	Processus de décohérence	167
5.6.1	Relaxation de l'énergie	167
5.6.2	Déphasage pur	168
5.6.3	Bilan des résultats	169
5.7	Effets du <i>detuning</i>	170
5.7.1	Influence du <i>detuning</i> sur la mesure du temps de cohérence	170
5.7.1.a	Considérations physiques	170
5.7.1.b	Influence du délai	172

5.7.1.c	Influence du déphasage	174
5.7.1.d	Conséquence sur les mesures du temps de cohérence	175
5.7.2	Influence du <i>detuning</i> sur la mesure du temps de vie	175
5.7.2.a	Franges de Ramsey avec deux impulsions π	175
5.7.2.b	Conséquence sur les mesures du temps de vie	177
Conclusion		179

Introduction

Les récentes propositions théoriques d'algorithmes quantiques [1], basées sur l'utilisation de portes logiques quantiques à la place de leur version classique, poussent les physiciens à exploiter un grand nombre d'interactions dans des systèmes variés, susceptibles de réaliser physiquement de tels objets [2, 3, 4, 5, 6, 7, 8].

L'élément de base formant une porte logique quantique est un système quantique à deux niveaux, appelé bit quantique ou *qubit*. Or, l'ensemble des systèmes physiques susceptibles d'implémenter un bit quantique ne sont pas totalement isolés de leur environnement. Le principal obstacle à la réalisation pratique de *qubits* est l'existence de processus de décohérence causés justement par l'interaction du système à deux niveaux avec son environnement. Plusieurs systèmes modèles issus de la physique atomique et de la physique du solide remplissent les conditions nécessaires à la réalisation pratique d'un *qubit* : niveaux énergétiques discrets et faible interaction avec l'environnement. Citons, par exemple, un ensemble de N ions refroidis en interaction les uns avec les autres via le champ électromagnétique d'un laser [9]. Les deux polarisations orthogonales des photons peuvent également constituer les deux états discrets d'un *qubit* [10]. Dans le domaine de la physique mésoscopique, la jonction Josephson reliée d'une part à une électrode supraconductrice nanométrique et d'autre part à un réservoir électronique constitue également un *qubit* [11, 12].

Enfin, les boîtes quantiques semi-conductrices présentent un spectre énergétique discret, engendré par le fort confinement électronique dans un volume de dimensions nanométriques. La transition fondamentale d'une boîte quantique présente, à priori, les caractéristiques d'un système à deux niveaux, étant donné que les excitations de plus basses énergies sont relativement bien isolées de l'environnement de la boîte.

En effet, l'absence de continuum électronique rend le couplage aux phonons très peu efficace [13, 14, 15]. L'écart énergétique entre les différents niveaux électroniques d'une boîte quantique est, d'une part, grand devant l'énergie typique des phonons acoustiques et, d'autre part, différent de l'énergie d'un phonon optique. Une boîte quantique constitue donc un système dans lequel la décohérence est principalement due au processus de recombinaison radiative. La largeur homogène de la transition est limitée par la largeur

naturelle proportionnelle aux taux d'émission spontanée ; le temps de cohérence est alors égal au double du temps de vie [16].

L'isolement des excitations se manifeste également par les longs temps de cohérence du spin des électrons ou des trous résidents présents dans les boîtes dopées. Les mécanismes dominant la relaxation du spin dans les semi-conducteurs massifs et les puits de potentiels sont liés au couplage spin-orbite et aux mécanismes de collisions entre les porteurs : mécanisme Elliott-Yafet, mécanisme Dyakonov-Perel. Le confinement des électrons dans une boîte inhibe les processus de collisions et rend les mécanismes précédents inefficaces. Ainsi, la physique du spin dans les boîtes est différente de celle dans les structures moins confinantes et rend possible l'étude de l'interaction hyperfine entre le spin du porteur résident et les spins nucléaires, qui devient le mécanisme de décohérence dominant [17].

Une autre application des boîtes quantiques, provenant de la discrétisation des niveaux et du principe d'exclusion de Pauli, est la génération de photons uniques. Le dégrouperment de photons caractéristiques des sources de photons uniques a été couramment observé sur ce système [18, 19]. Une importante application des sources de photons uniques est la cryptographie quantique où le protocole développé par Bennett et Brassard repose sur l'utilisation de photons uniques [20].

Enfin, nous aurons l'occasion de mettre en évidence le fait qu'un état à deux paires électron-trou confinées dans une boîte se désexcite en émettant successivement deux photons intriqués en polarisation [21].

Dans la thèse de Romain Melet [22], soutenue en 2008 dans l'équipe, la possibilité d'adresser un *qubit* de façon contrôlée, avait été démontrée et les oscillations de Rabi de l'état fondamental de l'exciton avaient été observées. Les premières expériences de contrôle cohérent, c'est-à-dire de manipulation du *qubit* pendant son temps de cohérence, voyaient le jour. L'objectif principal de ma thèse, était de comprendre et d'approfondir les mécanismes de couplage entre la boîte quantique et la lumière, maîtriser le contrôle cohérent d'un état quantique et comprendre les mécanismes de décohérence mis en jeu. Ce dernier point constitue toujours un aspect crucial pour envisager toute application en information quantique.

Le manuscrit comprend les cinq chapitres suivants.

Le premier chapitre est consacré à la présentation générale des boîtes quantiques. Nous y aborderons le principe d'obtention du confinement tridimensionnel des électrons dans les hétérostructures semi-conductrices, puis la structure électronique des boîtes sera détaillée.

Les échantillons seront décrits dans le deuxième chapitre. Nous montrerons dans ce chapitre et dans le troisième, décrivant le montage expérimental, comment le fait d'avoir insérer les boîtes quantiques dans des guides d'onde unidimensionnels permet de séparer spatialement l'excitation des boîtes et la détection de leur luminescence. Notre montage

de micro-photoluminescence, dans lequel l'excitation et la détection sont orthogonales, permet l'observation de la luminescence issue de la transition fondamentale d'une boîte même lorsque l'excitation est résonnante avec cette transition.

Enfin, les quatrième et cinquième chapitres présentent les résultats concernant la préparation et la manipulation optique de l'état d'une paire électron-trou unique. Dans le quatrième chapitre, nous montrons les oscillations de Rabi obtenues sur la transition fondamentale [23]. L'observation, dans un montage de micro-photoluminescence, du couplage fort entre la boîte quantique et la lumière est rendue possible par notre configuration expérimentale permettant de détecter la luminescence à la même énergie que l'excitation. Signalons que d'autres configurations expérimentales, voisines de celle que nous utilisons, ont également permis de découpler excitation et détection en utilisant des cavités planaires formées par des miroirs de Bragg [24] ou encore des micropiliers [25]. Outre la micro-photoluminescence, d'autres techniques ont également été exploitées pour observer des oscillations de Rabi : transmission différentielle [26], mélange à quatre ondes [27], et mesures de photocourant [28]. Cette dernière technique a permis de mettre en évidence des oscillations de Rabi sur le trion positif [29] et sur le biexciton [30].

Dans le cinquième chapitre, nous démontrons la possibilité de manipuler un *qubit* dans une expérience de contrôle cohérent, basée sur l'utilisation d'un train d'ondes de deux impulsions lumineuses résonnantes avec la transition fondamentale de la boîte quantique [31]. Nous montrons également comment le contrôle cohérent peut être utilisé pour mesurer les constantes de relaxation caractéristiques du système : temps de cohérence et temps de vie.

Chapitre 1

Boîtes quantiques semi-conductrices

Sommaire

1.1	Présentation	12
1.1.1	Fluctuations d'interface de GaAs sur AlGaAs	14
1.1.2	Boîtes quantiques auto-organisées d'InAs sur GaAs	15
1.2	Structure électronique des boîtes quantiques	15
1.2.1	Rappels de la structure de bandes du semi-conducteur massif	15
1.2.2	Boîtes quantiques	18
1.2.3	Transitions optiques	22
1.3	Structure fine de la paire électron-trou dans une boîte quantique asymétrique	25
1.4	Mesure du temps de vie	30
1.4.1	Principe des mesures	30
1.4.2	Excitation résonnante	32
1.4.3	Excitation non résonnante	32

1.1 Présentation

Dans ce chapitre, nous introduisons les notions essentielles et générales concernant les boîtes quantiques : leur fabrication, leurs propriétés électroniques et leur couplage à la lumière. La description détaillée des échantillons utilisés est reportée au deuxième chapitre.

La fabrication d'hétérostructures semi-conductrices repose toujours sur la technique générale consistant à empiler de matériaux de *gaps* de valeurs différentes. Une structure définie par une fine couche d'un matériau de faible *gap* inséré entre deux autres couches constituées de matériaux de plus grands *gaps* constitue un puits de potentiel qui confine les électrons de plus basses énergies dans le matériau de plus faible *gap*. L'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche centrale permettant d'obtenir un puits quantique est donné par la longueur d'onde de De Broglie λ_{th} des électrons piégés dont l'expression, en fonction de la température T , est la suivante :

$$\lambda_{th} = \sqrt{\frac{2\pi\hbar^2}{m^*k_B T}} \quad (1.1)$$

où m^* est la masse effective des électrons dans le matériau, k_B la constante de Boltzmann et $\hbar$ la constante de Planck. A une température cryogénique de 10 K, la valeur de la longueur d'onde de De Broglie des électrons de conduction est 50 nm.

Les premières hétérostructures de dimensions inférieures à 3 ont été les puits quantiques, structures bidimensionnelles où les électrons sont confinés dans une seule direction, l'axe de croissance, et ont un mouvement libre dans le plan des couches. L'énergie des électrons, E_e , et des trous, E_h , dans un puits quantique s'écrit comme la somme de deux termes. Le premier, $E_{e(h)}^{conf}$, provient du confinement des particules et le second, $E_{e(h)}^{libre}$, décrit une bande, dont l'origine physique est liée à l'invariance translationnelle dans le plan :

$$\begin{aligned} E_{e(h)} &= E_{e(h)}^{conf} + E_{e(h)}^{libre} \\ &= E_n + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_{e(h)}^*} \end{aligned} \quad (1.2)$$

où $\mathbf{k}_{\parallel}$ est le vecteur d'onde de l'électron ou du trou dans le plan et E_n une énergie prenant des valeurs discrètes à cause du confinement.

Ensuite, sont apparues des structures unidimensionnelles dans lesquelles les électrons sont confinés dans deux directions de l'espace et n'ont qu'un degré de liberté de translation dans la direction du fil. L'énergie des porteurs dans un fil est donc de la forme suivante :

$$E_{e(h)} = E_n + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_{e(h)}^*} \quad (1.3)$$

L'énergie des porteurs dans un fil quantique est donc encore décrite par des bandes, c'est-à-dire un continuum d'état, étant donné que leur énergie n'est pas discrétisée dans la direction du fil.

Enfin, le confinement dans les trois directions de l'espace est réalisée dans des structures dites 0D appelées boîtes quantiques. Du fait de l'absence totale de degré de liberté translationnel pour les électrons piégés dans une boîte quantique, la densité d'états d'une telle boîte se démarque de celle des autres structures puisqu'elle est constituée de niveaux discrets.

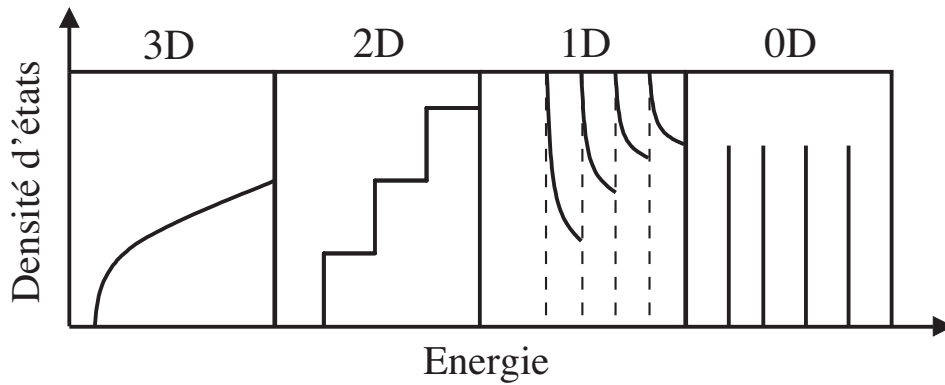


FIGURE 1.1 : Densité d'états en fonction du confinement des électrons.

Le schéma (1.1) montre les densités d'états des structures 3D, 2D, 1D et 0D. La densité d'états dans un semi-conducteur massif est proportionnelle à $\sqrt{E}$. Dans un puits quantique, elle est constante par paliers ; dans un fil quantique, elle est proportionnelle à $1/\sqrt{E - E_n}$. Enfin, la densité d'états d'une boîte quantique est constituée d'un ensemble de distributions de Dirac à l'énergie de chaque niveau discret. Cette propriété des boîtes quantiques, qui leur vaut le surnom d'atomes artificiels, peut être exploitée pour la réalisation de portes logiques dans le domaine de l'information quantique. D'un point de vue physique, le confinement tridimensionnel des porteurs dans une boîte quantique leur confère des propriétés singulières : allongement du temps de cohérence, gel des mécanismes de relaxation du spin. Cependant, nous verrons dans la section 1.2.2 que seule la transition fondamentale présente un pic dans la densité d'états. La présence d'un continuum bidimensionnel ajoute un fond continu aux états excités discrets.

Nous avons étudié deux types de boîtes quantiques : premièrement, des boîtes de GaAs sur AlGaAs engendrées par les fluctuations d'épaisseur d'un fil quantique et, deuxièmement, des boîtes auto-organisées d'InAs sur un substrat de GaAs.

1.1.1 Fluctuations d'interface de GaAs sur AlGaAs

Le confinement tridimensionnel des porteurs dans ce type de boîtes quantiques apparaît naturellement, à température cryogénique, à cause de défauts à l'interface d'hétérostructures semi-conductrices, puits quantiques ou fils quantiques [32, 33, 34, 35]. Ces défauts consistent principalement en des fluctuations d'épaisseur de plus ou moins une monocouche atomique pouvant être situées de manière aléatoire aux interfaces entre les matériaux. Ces fluctuations créent des puits de potentiels d'une profondeur de quelques dizaines de meV, dans lesquels les porteurs se piègent à basse température.

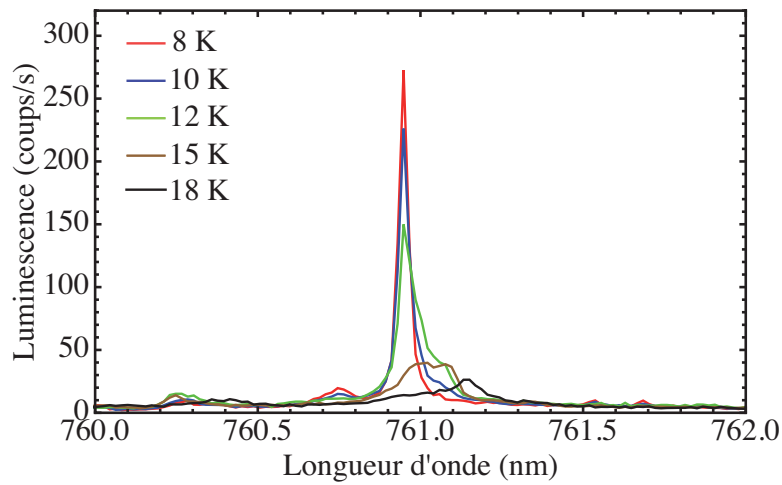


FIGURE 1.2 : Intensité de la luminescence d'une boîte quantique de GaAs en fonction de la température.

La figure (1.2) représente l'intensité de la luminescence d'une boîte unique excitée de manière résonnante à différentes températures. On observe que, lorsque la température augmente continûment de 8 K à 18 K, d'une part, l'intensité de la luminescence décroît et s'annule complètement à 18 K, et d'autre part, les raies de luminescence s'élargissent. Ces cinq spectres mettent bien en évidence la faiblesse du confinement dans de telles boîtes quantiques, ce dernier étant trop petit pour piéger les porteurs lorsque la température de l'échantillon est supérieure à 18 K.

Une autre conséquence de la faiblesse du confinement électronique est le petit nombre de niveaux discrets dans ces boîtes quantiques. En écrivant l'énergie des premiers états discrets d'un puits de potentiel sous la forme suivante $n^2 \frac{\hbar^2 \pi^2}{2mL_{loc}}$, T. Guillet [36] montre que, en considérant un potentiel de confinement typique de 10 meV, le nombre d'états confinés passe de deux à quatre lorsque la longueur de localisation, L_{loc} , augmente de 20 nm à 50 nm, intervalle de taille typique des boîtes quantiques dans les échantillons étudiés. De plus, il est rare d'observer la signature spectrale d'états confinés composés de plusieurs paires électron-trou, autre conséquence de la faiblesse du confinement.

1.1.2 Boîtes quantiques auto-organisées d'InAs sur GaAs

Le second type d'échantillons étudiés est constitué de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs sur GaAs. Dans le mode de croissance Stranski-Krastanov, décrit dans le deuxième chapitre, les atomes d'indium et d'arsenic migrent pour former des îlots de 20 nm de diamètre et de quelques nanomètres de hauteur. Le confinement électronique dans ces îlots est beaucoup plus fort que dans les boîtes quantiques de fluctuations d'interface.

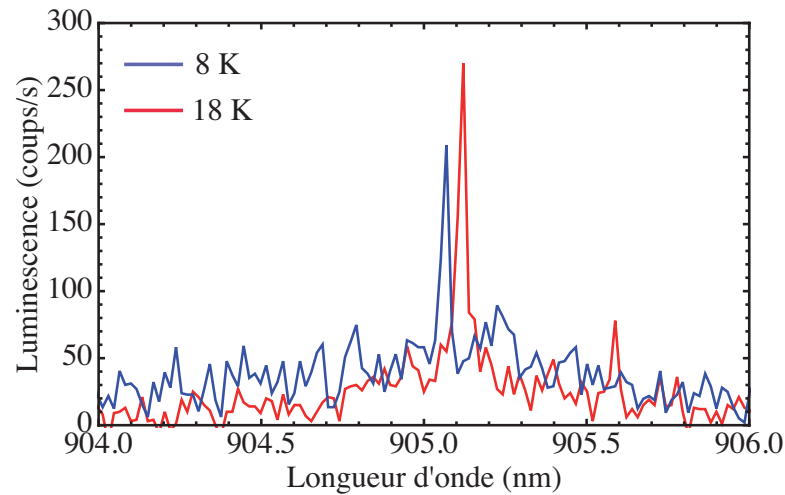


FIGURE 1.3 : Intensité de la luminescence d'une boîte quantique d'InAs en fonction de la température.

Les spectres de luminescence en fonction de la température présentés sur la figure (1.3) montrent en effet que sur l'intervalle de températures où l'intensité de la luminescence des boîtes de GaAs chute, l'intensité de la luminescence de boîtes d'InAs ne varie pas.

1.2 Structure électronique des boîtes quantiques

1.2.1 Rappels de la structure de bandes du semi-conducteur massif

L'approche couramment employée pour décrire la structure électronique des boîtes quantiques est la suivante : on part de la structure de bandes du semi-conducteur massif, puis, on regarde comment évolue cette structure lorsque la dimension des objets passe de trois à zéro. On commence par décrire le massif, puis le puits quantique et enfin la boîte quantique, qualifiée de structure 0D parce qu'elle confine les électrons dans les trois directions de l'espace.

Les composés semi-conducteurs III-V, comme le GaAs et l'InAs, cristallisent dans une structure zinc-blende, qui consiste en deux réseaux cubiques faces centrées s'interpénétrant, décalés l'un par rapport à l'autre d'un quart d'une diagonale d'une maille cubique.

Les composés III-V contiennent huit électrons externes par cellules primitives. Seulement ces électrons participent aux liaisons chimiques, les autres étant des électrons de coeur, inertes chimiquement parce que leurs fonctions d'onde sont localisées juste autour des noyaux. D'un point de vue atomique, les orbitales des atomes de type III s'hybrident avec celles des atomes de type V pour former des orbitales moléculaires liantes et anti-liantes. Comme le montre l'approche des liaisons fortes, dans un réseau cristallin, les orbitales atomiques forment des bandes liantes et anti-liantes. Dans l'état fondamental, les électrons externes remplissent les bandes liantes, deux électrons s et six électrons p. Signalons que la bande s liante reste toujours remplie, les deux électrons par maille qu'elle contient ne participent pas aux excitations électroniques du cristal. De plus, les bandes anti-liantes sont vides dans l'état fondamental, si bien que la bande s anti-liante, qui est la bande vide de plus basse énergie, constitue la bande de conduction du semi-conducteur. En résumé, les électrons de valence proviennent de bandes p, de moment cinétique orbital $L = 1$, alors que les électrons de conduction proviennent d'une bande s, de moment cinétique orbital $L = 0$.

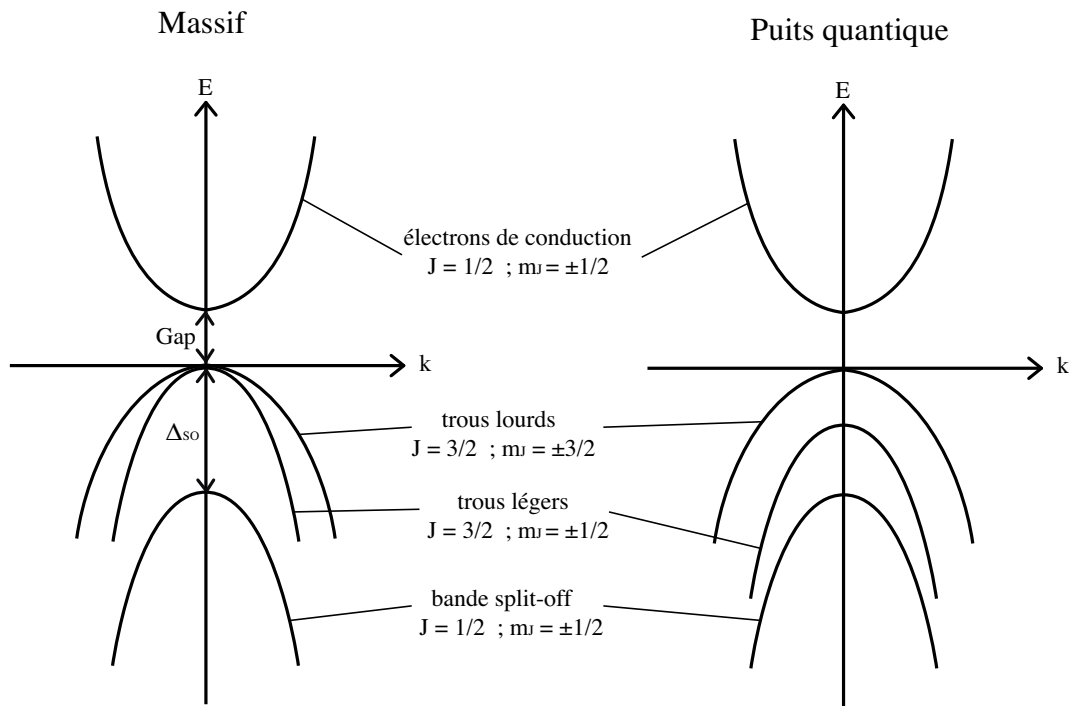


FIGURE 1.4 : Structure de bandes des électrons et des trous dans le semi-conducteur massif au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$.

La figure (1.4) schématise les quatre bandes obtenues au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ par la méthode $\mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}}$. Etant donné que les transitions optiques mettent en jeu uniquement des vecteurs d'onde de norme voisine de zéro, la description des bandes seulement au centre de zone est suffisante. Des méthodes numériques [37], comme la méthode pseudo-

potentiel [38] permettent d'affiner cette description et de l'étendre à toute la zone de Brillouin.

Au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, ces quatre bandes sont paraboliques et peuvent donc être décrites par leur énergie en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ et leur courbure, $\frac{\hbar^2}{m^*}$ où m^* est la masse effective des électrons ou des trous dont la valeur numérique est différente selon la bande considérée. En effet, le développement perturbatif de la théorie $\mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}}$ donne l'expression suivante de l'énergie $E_{n,\mathbf{k}}$ de la bande n en fonction de l'impulsion $\mathbf{k}$:

$$E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}} | u_{m,\mathbf{0}} \rangle|^2}{E_{n,\mathbf{0}} - E_{m,\mathbf{0}}} \quad (1.4)$$

où les fonctions $u_{m,\mathbf{0}}$ sont les fonctions de Bloch au centre de zone, fonctions constituant une base complète sur laquelle les fonctions de Bloch $u_{m,\mathbf{k}}$ et les énergies propres $E_{n,\mathbf{k}}$ sont développées.

En réécrivant formellement l'équation (1.4) de la manière suivante :

$$E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*}, \quad (1.5)$$

on définit la masse effective, m^* , des particules constituant la bande n .

La bande de conduction, provenant d'une orbitale atomique s, possède un moment cinétique total $J = 1/2$ avec les deux projections $m_J = \pm 1/2$ autorisées : cette bande est donc doublement dégénérée. Les trois bandes de trous possèdent des caractéristiques différentes les unes des autres. Tout d'abord, nous remarquons qu'elles ne possèdent pas la même courbure et, deuxièmement, seulement deux des trois bandes sont dégénérées en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$. La levée de dégénérescence de la bande de trous $J = 1/2, m_J = \pm 1/2$, dénommée bande *split-off*, avec les deux autres bandes de trous provient de l'interaction spin-orbite représentée par l'opérateur $\hat{H}_{so}$ suivant :

$$\hat{H}_{so} = \frac{\hbar}{4m_0^2 c^2} \hat{\mathbf{S}} \cdot (\nabla V \times \hat{\mathbf{p}}), \quad (1.6)$$

cet opérateur ne commutant pas avec l'opérateur de spin, $\hat{\mathbf{S}}$. La prise en compte de cette interaction a pour conséquence le rejet de la bande *split-off* en dessous des deux autres bandes de trous à une énergie Δ_{so} . Les valeurs élevées des *splitting* Δ_{so} dans les matériaux GaAs et InAs, rappelées dans le tableau (1.5), nous permettent, expérimentalement, de sélectionner en énergie les transitions optiques faisant intervenir uniquement les deux bandes de trous de plus hautes énergies. Dans la suite, nous ne tiendrons plus compte de la présence de cette bande.

Les deux bandes restantes sont décalées de la bande de conduction d'une énergie égale au *gap* du matériau, dont les valeurs sont présentées dans le tableau (1.5). Ces bandes,

paramètres	GaAs	InAs
gap (eV)	1.42	0.41
Δ_{SO} (eV)	0.341	0.38

FIGURE 1.5 : Tableau récapitulatif des constantes de GaAs et d’InAs [39].

possédant chacune un moment cinétique total $J = 3/2$, sont dégénérées en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ mais présentent des courbures différentes. En effet, dans l’approche $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$, la masse effective dépend de la valeur de la projection m_J du moment cinétique. La bande de trous $m_J = \pm 3/2$ présente une plus faible courbure que la bande de trous $m_J = \pm 1/2$. La masse effective des trous de la première bande est donc plus grande que la masse effective des trous de la seconde, c’est pourquoi les premiers sont appelés trous lourds et les seconds trous légers. Le tableau (1.6) récapitule les valeurs des masses effectives des particules où m_0 est la masse d’un électron libre.

particule	masse effective
électron de conduction	$0.067 m_0$
trou lourd	$-0.34 m_0$
trou léger	$-0.086 m_0$

FIGURE 1.6 : Masses effectives des particules.

Dans une hétérostructure qui confine les porteurs, la dégénérescence en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ des deux bandes de trous lourds et légers est levée à cause de l’énergie de confinement E_h^{conf} qui dépend de la masse effective des trous. En effet, dans un puits infini tridimensionnel, l’énergie des niveaux discrets est donnée par la formule suivante :

$$E_h^{conf} = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_h^*} \frac{n_z^2}{L_z^2} \quad (1.7)$$

où n_z est un entier supérieur à 1 et L_z la dimension du puits. Cette remarque restant valable pour les structure 1D et 0D, la bande de trous légers est souvent négligée étant donné que les excitations optiques interbandes de plus basses énergies ne font intervenir que les trous lourds.

1.2.2 Boîtes quantiques

1.2.2.a Calcul des fonctions d’onde en première quantification

Le calcul des états propres des électrons et des trous confinés dans une boîte quantique nécessite de prendre en compte le potentiel de confinement, $\hat{V}_{BQ}$, et l’interaction

coulombienne, $\hat{V}_{coul}$, entre les porteurs confinés. La hiérarchie entre ces deux potentiels d'interaction implique de traiter l'interaction coulombienne comme une perturbation et d'inclure le potentiel de confinement dans le hamiltonien non perturbé, $\hat{H}_0$.

Hamiltonien non perturbé à un corps

Dans l'approximation de la masse effective, le potentiel périodique ionique n'intervient pas dans le hamiltonien étant donné qu'il est pris en compte via la renormalisation de la masse des porteurs. Le hamiltonien non perturbé, $\hat{H}_0^{e(h)}$, pour un électron ou un trou contient donc deux termes : un premier terme d'énergie cinétique et le second qui correspond au confinement dans la boîte, $\hat{V}_{BQ}$:

$$\hat{H}_0^{e(h)} = \frac{\hat{p}^2}{2m_{e(h)}^*} + \hat{V}_{BQ} \quad (1.8)$$

Lorsque le potentiel de confinement, $\hat{V}_{BQ}$, est nul, les états propres du hamiltonien non perturbé, $\hat{H}_0$, sont les fonctions de Bloch. Dans le cas qui nous intéresse où $\hat{V}_{BQ} \neq 0$, les fonctions propres sont décrites dans la section suivante.

Approximation de la fonction enveloppe

Dans les hétérostructures semi-conductrices, le calcul des états électroniques peut se faire dans l'approximation de la fonction enveloppe. Cette approximation consiste à séparer le potentiel en deux contributions variant sur deux échelles de longueurs distinctes : l'échelle atomique sur laquelle varie le potentiel périodique du cristal créé par les ions et une échelle de longueur caractéristique du confinement électronique. En un point de l'hétérostructure éloigné des interfaces entre les différents matériaux, la dynamique des électrons et des trous est régie par le hamiltonien du semi-conducteur massif. La fonction d'onde d'un électron dans la bande n , $\psi_n(\mathbf{r})$, se présente sous la forme suivante :

$$\psi_n(\mathbf{r}) = \sum_m F_m(\mathbf{r}) u_{m,\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \quad (1.9)$$

où la fonction $u_{m,\mathbf{0}}(\mathbf{r})$ est la fonction de Bloch d'un électron de la bande m au centre de zone ($\mathbf{k} = \mathbf{0}$) et la fonction $F_m(\mathbf{r})$ une fonction enveloppe lentement variable à l'échelle atomique. Pour le calcul des transitions optiques, nous pouvons conserver uniquement une bande d'électrons de conduction et une bande de trous, celle de trous lourds. Dans ce cas, les fonctions d'onde des électrons de conduction, $\psi_e(\mathbf{r})$, et des trous, $\psi_h(\mathbf{r})$ se simplifient de sorte que :

$$\psi_{e(h)}(\mathbf{r}) = F_{e(h)}(\mathbf{r}) u_{e(h),\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \quad (1.10)$$

Nous remarquons que dans la limite où le potentiel de confinement, $\hat{V}_{BQ}$, est nul, la fonction enveloppe est donnée par l'exponentielle complexe, $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ de l'état de Bloch, état propre du hamiltonien non perturbé du semi-conducteur massif.

En injectant la fonction d'onde (1.10) dans l'équation aux valeurs propres suivante :

$$\hat{H}_0^{e(h)} \psi_{e(h)}(\mathbf{r}) = E \psi_{e(h)}(\mathbf{r}) \quad (1.11)$$

Nous trouvons que les fonctions enveloppes sont solutions de l'équation de Schrödinger effective suivante :

$$\left(\frac{\hat{p}^2}{2m_{e(h)}^*} + \hat{V}_{BQ} \right) F_{e(h)}(\mathbf{r}) = E F_{e(h)}(\mathbf{r}) \quad (1.12)$$

Si le potentiel de confinement, $\hat{V}_{BQ}$, possède une symétrie de révolution, alors les solutions de l'équation (1.22) sont décrites par deux nombres quantiques : n , nombre quantique principal et m_L , valeur propre de l'opérateur $\hat{L}_z$, projection du moment cinétique sur l'axe de quantification z . En suivant les notations de physique atomique, les fonctions enveloppes associées à la valeur propre 0 de m_L sont appelées S et celles associées aux valeurs propres ± 1 sont appelées P. Les états discrets d'une boîte d'InAs typique associés à ces fonctions enveloppes sont représentés sur le schéma (1.7) où apparaissent deux états de conduction discrets, $|S_c\rangle$ et $|P_c\rangle$ et deux états de valence discrets, $|S_v\rangle$ et $|P_v\rangle$. Sur ce schéma, les continuums d'états de conduction et de valence ne présentent pas le profil abrupt en marche d'escalier d'un puits quantique parfait. Les queues des densités d'états sont dues à la rugosité du puits quantique, appelé couche de mouillage, sur lequel croissent les boîtes quantiques. Ce point sera détaillé dans le deuxième chapitre présentant les échantillons.

1.2.2.b Traitement de l'interaction coulombienne en seconde quantification

En seconde quantification, le hamiltonien pour les électrons et les trous peut se scinder en cinq termes comme suit [40] :

$$\hat{H}_{eh} = \hat{H}_e + \hat{H}_h + \hat{V}_{ee} + \hat{V}_{hh} + \hat{V}_{eh} \quad (1.13)$$

Les deux parties à un corps, $\hat{H}_e$ et $\hat{H}_h$, du hamiltonien (1.13) se développent sur les états propres de $\hat{H}_0$ de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \hat{H}_e &= \sum_{n,m} E_{nm}^{(e)} a_{nm}^\dagger a_{nm} \\ \hat{H}_h &= \sum_{n,m} E_{nm}^{(h)} b_{nm}^\dagger b_{nm} \end{aligned} \quad (1.14)$$

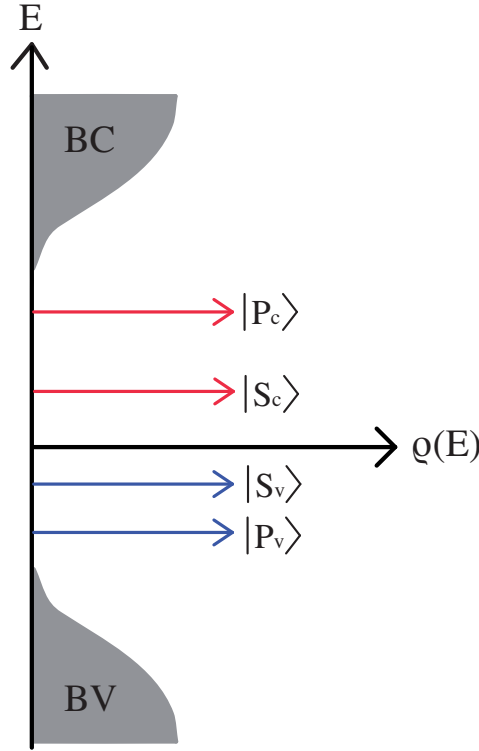


FIGURE 1.7 : Densité d'états typique d'une boîte quantique d'InAs de symétrie de révolution.

où les opérateurs $a_{nm}^\dagger$ et a_{nm} sont les opérateurs création et annihilation des états propres électroniques de $\hat{H}_0$ tels que :

$$\langle \mathbf{r} | a_{nm}^\dagger | 0 \rangle = \psi_e^{nm}(\mathbf{r}) \quad (1.15)$$

De même $b_{nm}^\dagger$ et b_{nm} sont les opérateurs création et annihilation des états propres de trous de $\hat{H}_0$ tels que :

$$\langle \mathbf{r} | b_{nm}^\dagger | 0 \rangle = \psi_h^{nm}(\mathbf{r}) \quad (1.16)$$

$|0\rangle$ étant l'état du vide.

Les parties à deux corps correspondant à la répulsion coulombienne entre deux électrons, $\hat{V}_{ee}$, à la répulsion coulombienne entre deux trous, $\hat{V}_{hh}$, et à l'attraction entre un électron et un trou, $\hat{V}_{eh}$, s'écrivent comme suit :

$$\hat{V}_{ee} = \frac{1}{2} \sum V \begin{pmatrix} n'_2 m'_2 & n_2 m_2 \\ n'_1 m'_1 & n_1 m_1 \end{pmatrix} a_{n'_1 m'_1}^\dagger a_{n'_2 m'_2}^\dagger a_{n_2 m_2} a_{n_1 m_1} \quad (1.17)$$

De même pour l'interaction répulsive trou-trou, $\hat{V}_{hh}$. Il vient pour l'interaction attractive électron-trou [41] :

$$\hat{V}_{eh} = - \sum V \begin{pmatrix} n'_2 m'_2 & n_2 m_2 \\ n'_1 m'_1 & n_1 m_1 \end{pmatrix} a_{n'_1 m'_1}^\dagger b_{n'_2 m'_2}^\dagger b_{n_2 m_2} a_{n_1 m_1} \quad (1.18)$$

Etant donné que nous recherchons les états propres d'une seule paire électron-trou, la bande de conduction ne contient au maximum qu'un électron et la bande de valence qu'un trou. Par conséquent, l'action des potentiels $\hat{V}_{ee}$ et $\hat{V}_{hh}$ est nulle sur un tel état.

L'étape suivante est de sélectionner, parmi l'ensemble des processus d'interaction permis par le potentiel $\hat{V}_{eh}$, ceux qui vont avoir un rôle dominant, c'est-à-dire, au premier ordre, ceux qui conservent l'énergie. En fait, il n'y en a que deux : un processus direct dans lequel l'électron et le trou, après avoir interagi ensemble, restent dans le même état respectif et un processus dit d'échange électron-trou dans lequel l'électron et le trou se recombinent avant d'être recréés dans les mêmes états. L'amplitude du processus direct, V_{dir} , est donnée par l'intégrale suivante :

$$V_{dir} = \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{n_h}^*(\mathbf{r}_1) \psi_{n_e}^*(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{n_e}(\mathbf{r}_2) \psi_{n_h}(\mathbf{r}_1) \quad (1.19)$$

avec la représentation diagrammatique montrée sur la figure (1.8).

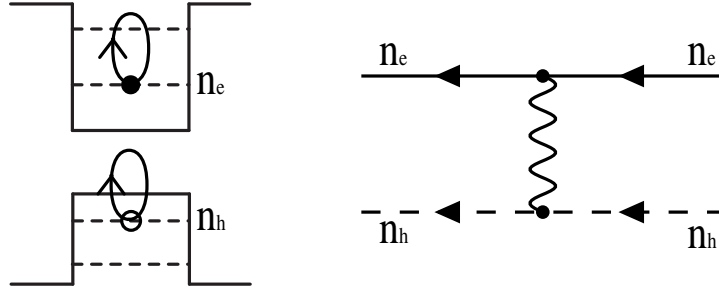


FIGURE 1.8 : Processus d'interaction direct entre un électron et un trou.

L'amplitude du processus d'échange, V_{ech} , est donnée par l'intégrale suivante :

$$V_{ech} = \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \psi_{n_h}^*(\mathbf{r}_1) \psi_{n_e}^*(\mathbf{r}_2) \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 |\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \psi_{n_e}(\mathbf{r}_1) \psi_{n_h}(\mathbf{r}_2) \quad (1.20)$$

avec la représentation diagrammatique montrée sur la figure (1.9).

1.2.3 Transitions optiques

D'après [42], les transitions optiques interbandes permises entre un état électronique de la bande de valence et un état de conduction sont celles pour lesquelles le produit suivant est non nul :

$$\langle u_c | \hat{\mathbf{p}} | u_v \rangle \int_V F_c F_v d\mathbf{r} \quad (1.21)$$

Le second facteur est non nul si les symétries des fonctions enveloppes des électrons de valence et de conduction sont les mêmes. Les seules transitions optiques interbandes permises sont celles du type $S_v \leftrightarrow S_c$, $P_v \leftrightarrow P_c$. La transition que nous étudierons principalement

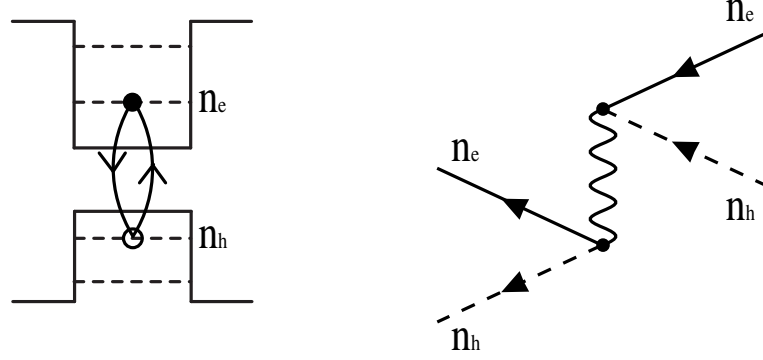


FIGURE 1.9 : Processus d'interaction d'échange électron-trou.

est la transition fondamentale $1S_v \leftrightarrow 1S_c$. Le premier facteur, $\langle u_c | \hat{\mathbf{p}} | u_v \rangle$ gouverne les règles de sélections optiques en polarisation dans la boîte quantique. Nous allons voir que ce facteur n'autorise que les transitions optiques entre deux états électroniques dont la variation de la projection du moment cinétique total vaut ± 1 . Dans le paragraphe suivant, les règles de sélection concernant la transition fondamentale $1S_v \leftrightarrow 1S_c$ sont exprimées dans la base des états propres d'une paire électron-trou.

Base des états propres d'une paire électron-trou

Les règles de sélection optique sont souvent exprimées dans la base plus pertinente des états propres d'une paire électron-trou. La composition des moments cinétiques [43] à partir des deux états de trous lourds suivants :

$$\begin{aligned} |J^h = 3/2, m_J^h = +3/2\rangle &= |\uparrow\uparrow\rangle \\ |J^h = 3/2, m_J^h = -3/2\rangle &= |\downarrow\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (1.22)$$

et des deux états d'électrons de conduction suivants :

$$\begin{aligned} |J^e = 1/2, m_J^e = +1/2\rangle &= |\uparrow\rangle \\ |J^e = 1/2, m_J^e = -1/2\rangle &= |\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (1.23)$$

donne les quatre états de paires électron-trous montrés sur la figure (1.10).

Dans le cas d'une boîte quantique symétrique, les états de paire $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ sont dégénérés ainsi que les deux états $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$. Les règles de sélections impliquent que le moment cinétique total du système { paire électron-trou + photon } soit conservé lors d'une transition optique. La paire électron-trou $|+1\rangle$ est couplée au vide via l'absorption ou l'émission d'un photon $\sigma+$ de moment cinétique $+1$ et la paire $|-1\rangle$ est couplée au vide via un photon $\sigma-$. Les deux états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ sont appelés états brillants parce

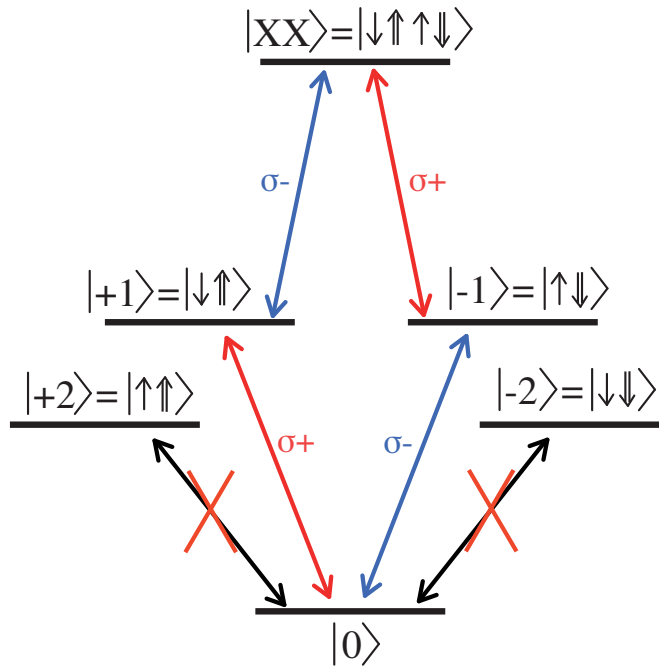


FIGURE 1.10 : Règles de sélection optique pour une boîte symétrique.

qu'ils sont couplés à la lumière alors que les deux états $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$ sont qualifiés de noirs étant donné que la lumière ne peut pas assurer de transition entre ces états et le vide. Enfin, les états brillants sont également couplés à l'état à deux paires, $|XX\rangle$, de moment cinétique total égal à 0.

Sur le schéma (1.10), les états noirs figurent à plus basse énergie que les états brillants. Ce *splitting* se comprend bien à partir du diagramme (1.9) qui représente l'interaction d'échange électron-trou. Cette interaction peut être interprétée comme l'émission d'un photon virtuel, représenté par la ligne ondulée, lors de la recombinaison de la paire électron-trou entrante. Ce photon virtuel est immédiatement réabsorbé et crée la paire électron-trou sortante. Or, les paires électron-trou noirs, n'étant pas couplés à la lumière, ne peuvent pas interagir via ce processus contrairement aux paires brillantes. De plus, ce processus étant un échange entre deux particules de charges opposées contribue à une augmentation de l'énergie, ce qui explique le fait que les paires brillantes soient à plus haute énergie que les paires noires [44].

Spectre d'absorption d'une boîte quantique d'InAs tenant compte des transitions mixtes

La figure (1.11), tirée de [45], montre le calcul de l'absorption interbande d'une boîte quantique d'InAs. Les deux transitions discrètes $1S_h \leftrightarrow 1S_e$ et $1P_h \leftrightarrow 1P_e$ sont observées.

Par ailleurs, cette figure fait apparaître l'existence d'un quasi-continuum qui s'étale entre l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ et le continuum des états de la couche de mouillage. Ce fond continu, observé en premier par Toda & *al* [46] s'explique par la présence de transitions dites croisées entre un état localisé dans la boîte quantique et un état délocalisé dans la couche de mouillage [47]. L'existence de ces transitions mixtes met en évidence que seule la transition fondamentale, $1S_h \leftrightarrow 1S_e$, est vraiment isolée de ce quasi-continuum. C'est une des raisons pour lesquelles nous nous consacrerons principalement à l'étude de cette transition particulière, caractérisée par un temps de vie et un temps de cohérence longs.

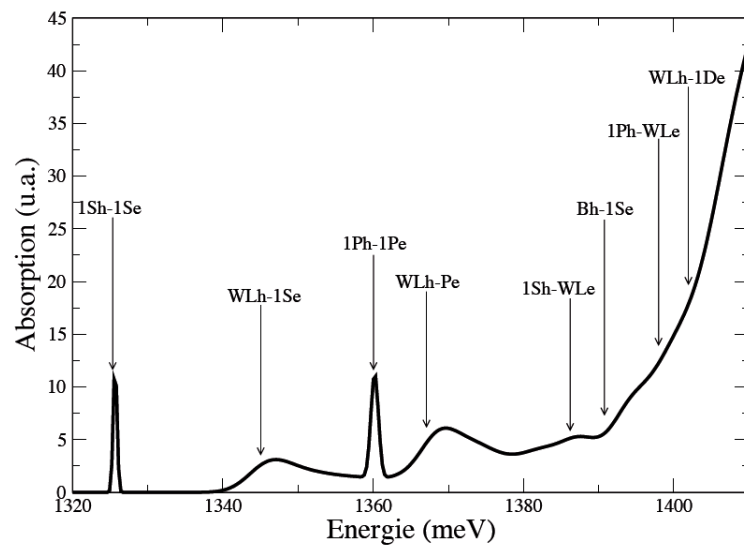


FIGURE 1.11 : Calcul de l'absorption interbande d'une boîte quantique unique prenant en compte les transitions mixtes entre les états discrets de la boîte quantique et le puits quantique constitué par la couche de mouillage [45].

1.3 Structure fine de la paire électron-trou dans une boîte quantique asymétrique

Dans la réalité, la base des boîtes quantiques d'InAs n'est pas circulaire mais elliptique et la base des boîtes de GaAs n'est pas de forme carrée mais plutôt rectangulaire. Ces brisures de symétrie entraînent une modification des états propres des boîtes quantiques présentés dans la section précédente. Le changement des états propres est provoqué par l'interaction d'échange, qui n'est plus diagonale dans la base des paires électron-trou $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$, à cause de la réduction de symétrie du système [48, 49, 50, 51]. Dans cette base, l'interaction d'échange s'écrit sous la forme matricielle suivante [52, 53] :

$$V_{ech} = \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

Cette matrice n'étant pas diagonale, les états de paires électron-trou précédents ne sont donc pas états propres du hamiltonien (1.13). La diagonalisation de cette matrice (1.24) conduit aux levées de dégénérescence, d'une part, des états brillants et, d'autre part, des états noirs. Les nouveaux états propres brillants, $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, sont séparés d'une énergie δ_1 , de l'ordre de quelques dizaines de μeV , appelée *splitting* d'échange électron-trou anisotrope. Ces états propres sont couplés aux photons polarisés linéairement selon les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$. Dans l'ancienne base, ces états s'écrivent de la sorte :

$$\begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+1\rangle + |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+1\rangle - |-1\rangle) \end{cases} \quad (1.25)$$

Les nouveaux états propres noirs, $|D1\rangle$ et $|D2\rangle$, sont séparés des états brillants d'une quantité Δ_0 , de l'ordre de 0.5 meV [54], et le *splitting* entre les deux états noirs, δ_2 , vaut quelques dizaines de μeV . Ces états propres s'écrivent de la manière suivante :

$$\begin{cases} |D1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+2\rangle + |-2\rangle) \\ |D2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|+2\rangle - |-2\rangle) \end{cases} \quad (1.26)$$

Le schéma (1.12) résume l'évolution des états propres d'une boîte quantique en fonction de sa symétrie.

Le spectre de micro-luminescence de la figure (1.13), obtenu sur des boîtes quantiques d'InAs, montre deux raies polarisées linéairement à 90 degrés l'une de l'autre, centrées à 936.4 nm. Ce spectre est obtenu en excitant de manière non résonnante et en analysant la luminescence avec un polariseur suivant les axes X (courbe bleue), correspondant à la direction cristallographique $[110]$, et Y (courbe rouge) correspondant à la direction $[1\bar{1}0]$. L'analyse de la polarisation linéaire fait clairement apparaître un *splitting* d'échange anisotrope, δ_1 , qui, pour cette boîte particulière vaut environ 50 μeV . L'observation de ce *splitting* a été déjà reportée maintes fois dans les fils quantiques [55] et dans les boîtes quantiques [34, 56, 57, 58, 59]. Généralement, la valeur de ce *splitting*, comprise entre quelques μeV et 100 μeV , ne peut pas être obtenue directement avec notre spectromètre dont la résolution, de l'ordre de 50 μeV , n'est pas suffisamment bonne.

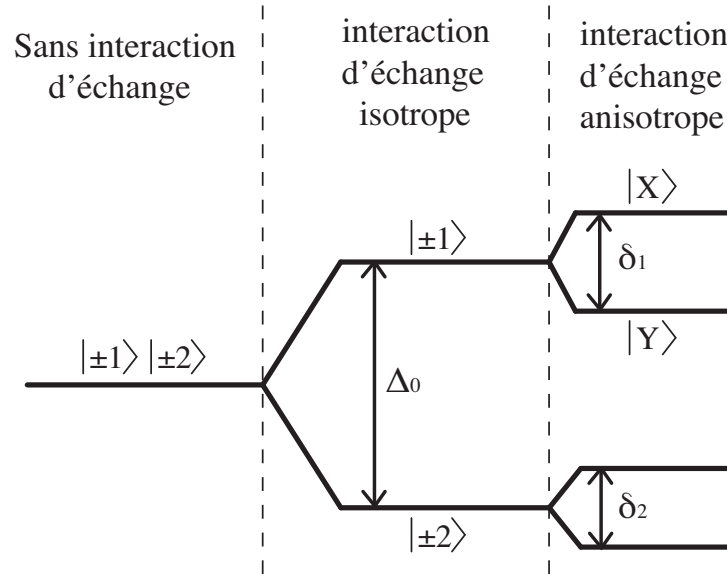


FIGURE 1.12 : Etats propres des paires électron-trous en fonction de la symétrie de la boîte quantique.

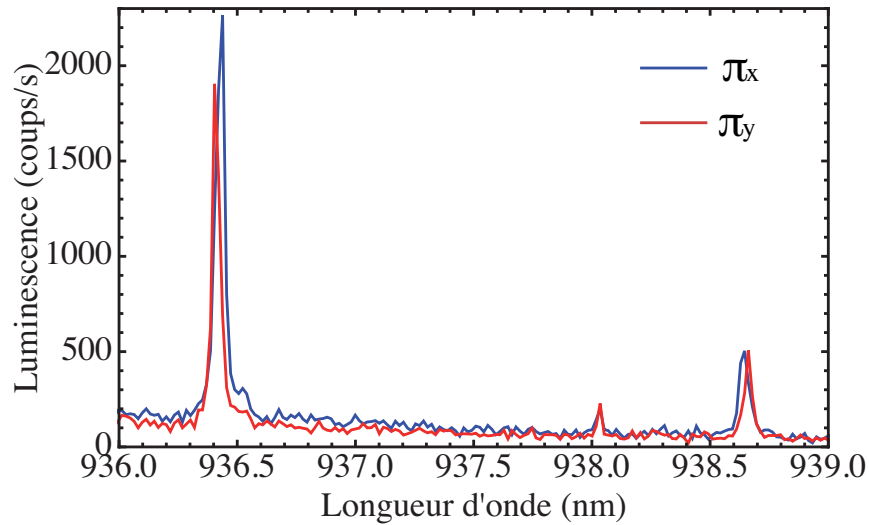


FIGURE 1.13 : Spectres de luminescence analysée linéairement selon la direction X (courbe bleue) et Y (courbe rouge).

Cascade radiative du biexciton

Les raies centrées à 936.4 nm sont attribuées à la luminescence de l'exciton alors que celles centrées à 938.7 nm proviennent de la luminescence du biexciton, c'est-à-dire deux paires électrons-trous, de la même boîte quantique. Signalons qu'il est possible de piéger plus de deux paires dans une boîte quantique d'InAs, l'émission d'états à six paires ayant été observée par Bayer & al [60]. Ces raies, situées 3 meV en dessous des raies excitoniques

et moins intenses que ces dernières, présentent également un *splitting* de structure fine. La différence d'énergie de 3 meV est égale à l'énergie de liaison E_l du biexciton. En effet, à cause de l'interaction coulombienne entre les deux électrons et les deux trous, l'énergie de deux paires, E_{XX} , n'est pas égale au double de l'énergie moyenne d'une paire, E_X . Selon les tailles des boîtes quantiques [61], deux cas de figures peuvent se présenter : pour les petites boîtes quantiques, la répulsion coulombienne électron-électron et trou-trou est dominante. Dans ce cas, l'énergie de deux paires est plus grande que le double de l'énergie d'une seule paire. Pour les plus grandes boîtes, l'interaction coulombienne d'échange est dominante et engendre une diminution de l'énergie du biexciton par rapport à l'énergie de deux paires indépendantes ; la différence d'énergie suivante : $2E_X - E_{XX} = E_l$ est appelée énergie de liaison. Dans la plupart des cas, l'interaction coulombienne entre deux paires est liante. C'est effectivement le cas de la boîte dont le spectre est montré sur la figure (1.13) où la paire électron-trou qui se recombine en premier émet un photon de plus basse énergie, à 938.6 nm, que la paire électron-trou qui se recombine en deuxième, à 936.4 nm.

De plus, Le fait que les composantes X et Y du biexciton soient inversées en énergie par rapport à l'exciton est caractéristique de la luminescence du biexciton.

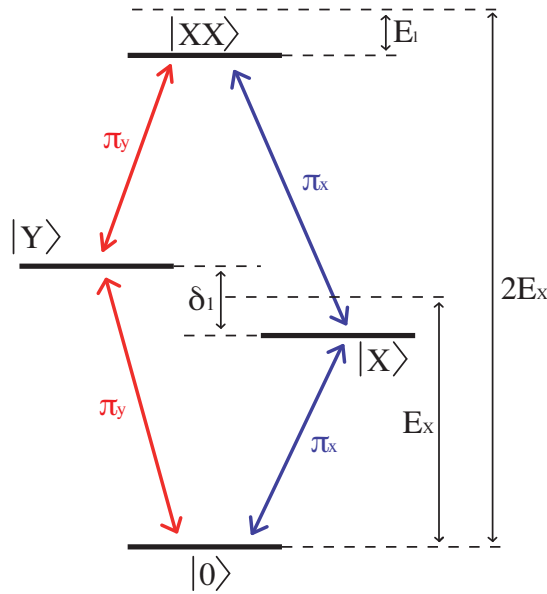


FIGURE 1.14 : Cascade radiative du biexciton.

Le schéma (1.14), qui illustre la cascade radiative du biexciton [62, 63, 64], permet de comprendre le renversement des composantes de l'exciton et du biexciton. Un biexciton, piégé dans une boîte quantique anisotrope, peut relaxer selon deux chemins différents : soit il émet spontanément un premier photon Π_X polarisé linéairement selon l'axe X possédant une énergie $E_X - E_l + \frac{\delta_1}{2}$, puis un second photon Π_X d'énergie $E_X - \frac{\delta_1}{2}$. Soit la

paire électron-trou se recombinant en premier émet un photon Π_Y , polarisé selon l'axe Y, d'énergie $E_X - E_l - \frac{\delta_1}{2}$, la seconde paire émettant obligatoirement un photon Π_Y , d'énergie $E_X + \frac{\delta_1}{2}$. Ces deux chemins ont la même probabilité de se produire, si bien que la cascade radiative produisant deux photons Π_X consécutifs participe aux deux raies bleues alors que celle produisant deux photons Π_Y consécutifs participe aux deux raies rouges sur le spectre(1.13).

Lorsque le *splitting* de structure fine est plus petit que la largeur naturelle des raies de luminescence, les deux chemins possibles pour la cascade radiative deviennent indiscernables et l'état quantique des photons émis est un état intriqué en polarisation [65, 66, 67, 68, 69, 21, 70]

La raie de luminescence associée aux biexcitons a été également observée sur des boîtes de GaAs de fluctuations d'interface [71, 72]. Enfin, plusieurs groupes ont exploité ce système biexcitonique à quatre niveaux pour implémenter une porte logique *Controlled-Not* [73] dont nous expliquons le principe dans le paragraphe suivant.

Exemple d'une porte logique quantique : *Controlled-NOT*

La porte logique à deux *qubits* *Controlled-Not* (abrégé en *C-NOT*) revêt une importance particulière en information quantique puisqu'on peut montrer que n'importe quelle opération logique de plusieurs *qubits* peut être décomposée en une suite de portes logiques à un *qubit* et de portes *C-NOT* [74]. Cette porte nécessite deux *qubits* en entrée : le *qubit* de contrôle, $|A\rangle$, représenté par la ligne du haut sur le schéma (1.15) et le *qubit* cible, $|B\rangle$, représenté par la ligne du bas.

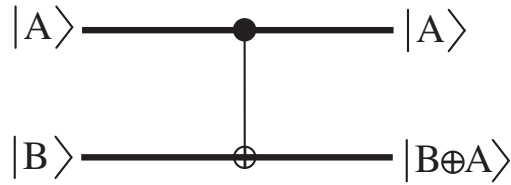


FIGURE 1.15 : Schéma d'une porte logique quantique *Controlled-NOT*.

Cette porte logique réalise l'action suivante : si le *qubit* de contrôle est dans l'état $|0\rangle$ alors le *qubit* cible n'est pas modifié par la porte. Au contraire, si le *qubit* de contrôle est dans l'état $|1\rangle$ alors le *qubit* cible change d'état ; en base 2, l'état final du *qubit* cible est donc représenté par le ket $|B \oplus A\rangle$, où le symbole $\oplus$ représente ici une addition modulo 2.

La table de vérité U_{cnot} de la porte C-NOT, en représentation matricielle dans la base $\{|00\rangle, |01\rangle, |10\rangle, |11\rangle\}$, où les kets indiquent en premier l'état du *qubit* de contrôle et en second celui du *qubit* cible, est la suivante :

$$U_{cnot} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.27)$$

L'implémentation de la porte *C-NOT* en exploitant le système à quatre niveaux, schématisé sur la figure (1.14), nécessite l'utilisation de deux lasers impulsionnels résonnants d'une part avec les transitions $|0\rangle \rightarrow |X\rangle$ et $|0\rangle \rightarrow |Y\rangle$, et d'autre part avec les transitions $|X\rangle \rightarrow |XX\rangle$ et $|Y\rangle \rightarrow |XX\rangle$. Le *splitting* d'échange anisotrope δ_1 est suffisamment petit pour être négligé devant les largeurs spectrales des impulsions utilisées. Le laser résonnant sur la transition biexcitonique, appelé laser de contrôle, est polarisé linéairement selon l'axe X de telle manière à ne coupler que les états $|X\rangle$ et $|XX\rangle$ sans permettre de couplage avec l'état $|Y\rangle$. De plus, l'impulsion qu'il produit doit être une impulsion π (voir le quatrième chapitre), c'est-à-dire qu'une telle impulsion engendre une inversion de population complète : elle transforme l'état $|X\rangle$ en état $|XX\rangle$ et inversement. Par ailleurs, le laser résonnant sur la transition excitonique prépare l'état initial du système sur lequel la porte *C-NOT* agit. La correspondance entre la base logique dans laquelle la matrice (1.27) est exprimée et la base excitonique définie sur la figure (1.14) est la suivante :

$$\begin{cases} |0\rangle = |00\rangle \\ |Y\rangle = |01\rangle \\ |X\rangle = |10\rangle \\ |XX\rangle = |11\rangle \end{cases} \quad (1.28)$$

On s'aperçoit que le laser de contrôle, n'étant pas couplé aux états $|0\rangle$ et $|Y\rangle$, laisse ces derniers inchangés alors qu'il transforme l'état $|X\rangle$ en état $|XX\rangle$ et l'état $|XX\rangle$ en état $|X\rangle$.

1.4 Mesure du temps de vie

1.4.1 Principe des mesures

Les mesures de décroissance de la luminescence présentées dans cette section peuvent nous renseigner sur la structure électronique des boîtes quantiques. Ces mesures sont réalisées avec une *streak camera* sur des boîtes quantiques de GaAs dont l'émission a lieu autour de 750 nm. La luminescence des boîtes d'InAs ne peut pas être détectée par notre *streak camera* dont le rendement quantique est trop faible aux longueurs d'onde plus

grandes que 900 nm. Nous présenterons, dans le cinquième chapitre, une autre méthode basée sur le contrôle cohérent, permettant de mesurer des temps de vie sur ce type de boîte.

Deux types de mesures, différentes par le protocole d'excitation de la luminescence, sont réalisées : des mesures sous excitation strictement résonnante et des mesures sous excitation non résonnante.

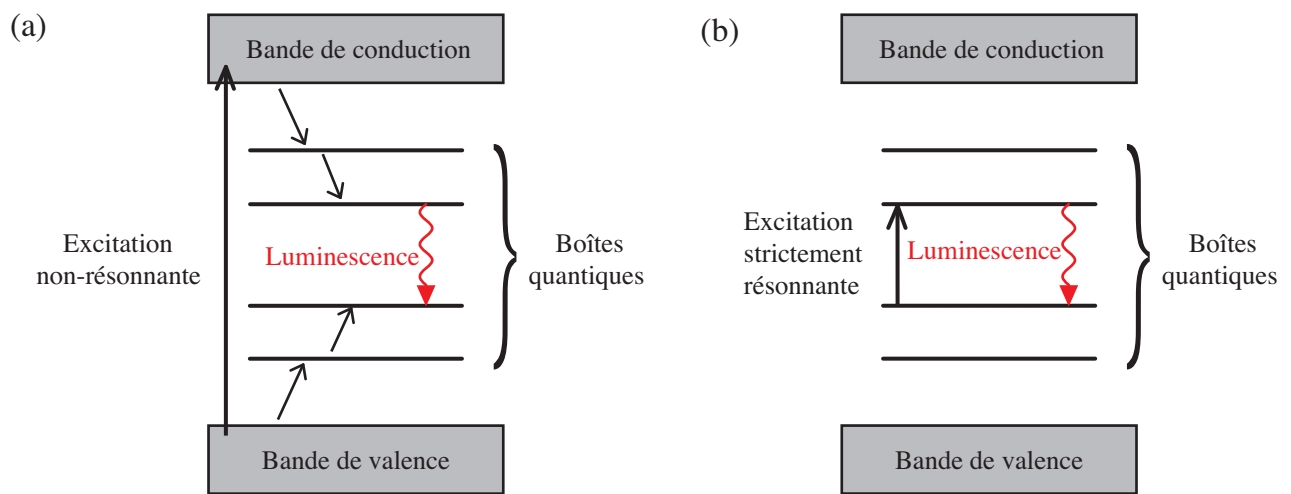


FIGURE 1.16 : (a) Luminescence excitée de manière non-résonnante. (b) Luminescence excitée strictement à la résonance.

Comme le montre le schéma (1.16b), une excitation résonnante ne peuple qu'un seul état de la boîte quantique. Par contre, lors d'une excitation non résonnante (figure 1.16a), l'absorption de la lumière se fait sur les transitions à plus hautes énergies que la transition fondamentale, dans les continums d'états électroniques. Les excitations de hautes énergies relaxent non radiativement, par des processus assistés par émission de phonons, vers tous les états discrets de plus basses énergies. Il y a donc deux différences importantes entre ces deux modes d'excitation. Premièrement, le nombre d'états peuplés : une excitation résonnante ne peuple qu'un seul état alors qu'une excitation non résonnante en peuple plusieurs. Deuxièmement, les courbes temporelles non résonnantes montrent un temps de montée de l'ordre de 100 ps lié au temps de la cascade non radiative alors que l'excitation résonnante peuple directement le niveau luminescent sans temps de montée. Nous allons montrer comment les différences de temps de décroissance, qui découlent de ces deux modes d'excitation, peuvent nous renseigner sur les temps de relaxation entre les états discrets de plus basses énergies d'une boîte quantique.

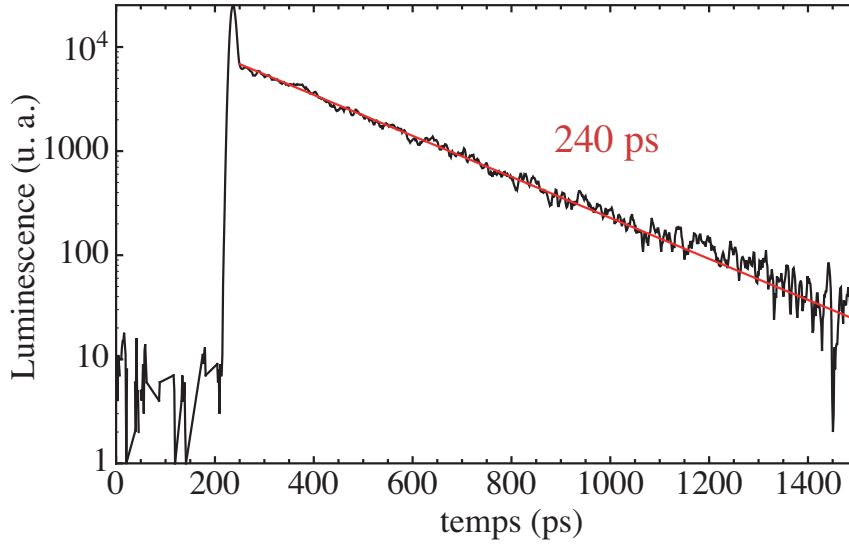


FIGURE 1.17 : Déclin temporel mono-exponentiel de la photoluminescence sous excitation résonnante. Le temps de vie mesuré est de 240 ps.

1.4.2 Excitation résonnante

La figure (1.17) représente la décroissance temporelle de la luminescence d'une boîte quantique excitée de manière résonnante. A faible puissance d'excitation, il n'est possible d'exciter qu'une seule boîte quantique, celle qui est à la résonance avec le laser. Dans ces conditions, il est inutile de disperser spectralement la luminescence pour isoler l'émission d'une boîte unique, si bien que nous travaillons à l'ordre 0 du réseau pour profiter d'une bonne résolution temporelle, seulement limitée par la résolution intrinsèque de la *streak camera*, de l'ordre de 5 ps. Aux temps courts, nous observons un pic intense provenant de la diffusion du laser aux interfaces du guide d'onde, et aux temps plus longs, une décroissance mono-exponentielle, caractéristique de la luminescence d'une boîte quantique excitée à la résonance par une impulsion brève. Le temps de la décroissance, de 240 ps, correspond au temps de vie de la transition fondamentale. Par la suite, nous verrons que ce temps est uniquement dû à l'émission spontanée, il correspond donc au temps de vie radiatif de cette transition, T_1^R .

1.4.3 Excitation non résonnante

Lorsque les boîtes quantiques sont excitées par une impulsion laser dont les photons possèdent une plus grande énergie que les états radiatifs des boîtes quantiques, les spectres de luminescence résolue en temps deviennent plus compliqués à analyser. La figure (1.18) représente la décroissance temporelle de la luminescence de la boîte quantique dont le temps de vie radiatif, de 240 ps, a été mesuré sur la figure (1.17).

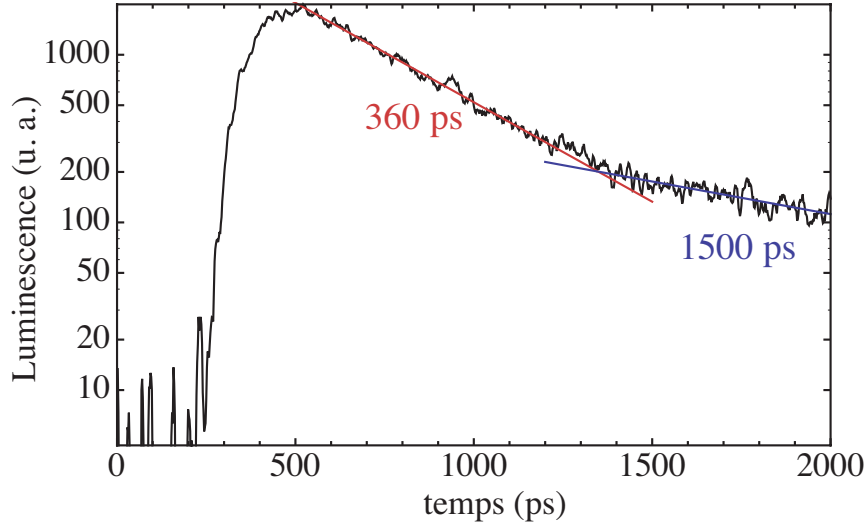


FIGURE 1.18 : Déclin temporel de la photoluminescence sous excitation non-résonnante. Temps court : 360 ps. Temps long : 1500 ps.

Premièrement, le déclin de la luminescence montré sur la figure (1.18) n'est pas mono-exponentiel : on observe, à priori, un temps court de 360 ps et un temps long de 1500 ps. Ce temps long, qui n'apparaît pas sur les spectres résonnants, provient du peuplement des excitons noirs lorsque les porteurs créés à plus haute énergie relaxe non radiativement vers les états de la boîte de plus basses énergies.

Deuxièmement, le temps court résultant d'une excitation non résonnante est plus long que le temps de vie radiatif T_1^R calculé à partir du déclin de la luminescence obtenu sous excitation résonnante. La figure (1.19) fait apparaître clairement le fait que le temps non résonnant, de 360 ps, est plus long que le temps résonnant, de 240 ps.

Pour expliquer ces deux différences entre les spectres résonnant et non résonnant, nous modélisons la boîte quantique par le système à quatre niveaux [75, 76], schématisé sur la figure (1.20). Le niveau de plus haute énergie, $r(t)$, correspond au réservoir de paires électron-trou chaudes, créées initialement par l'impulsion laser.

Les porteurs du réservoir relaxent ensuite vers les niveaux fondamentaux des excitons brillant, $b(t)$, et noir, $n(t)$ avec un temps de relaxation τ_R . Enfin, les excitons noirs peuvent, soit relaxer non radiativement vers le vide $v(t)$ avec un temps caractéristique T_1^{NR} , soit devenir brillant avec une probabilité $1/\tau_{sf}$. Le temps τ_{sf} , dit de *spinflip*, est long relativement aux autres constantes de temps, étant donné que la transition exciton noir-exciton brillant nécessite à la fois, un apport d'énergie et un renversement du spin de l'électron ou du trou [77, 78, 79]. Plusieurs expériences ont mis en évidence l'existence de ce processus de *spinflip*. Donnons un exemple d'électrodynamique en cavité où ce processus apparaît lorsqu'un mode propre de polariton est accordé en énergie avec un

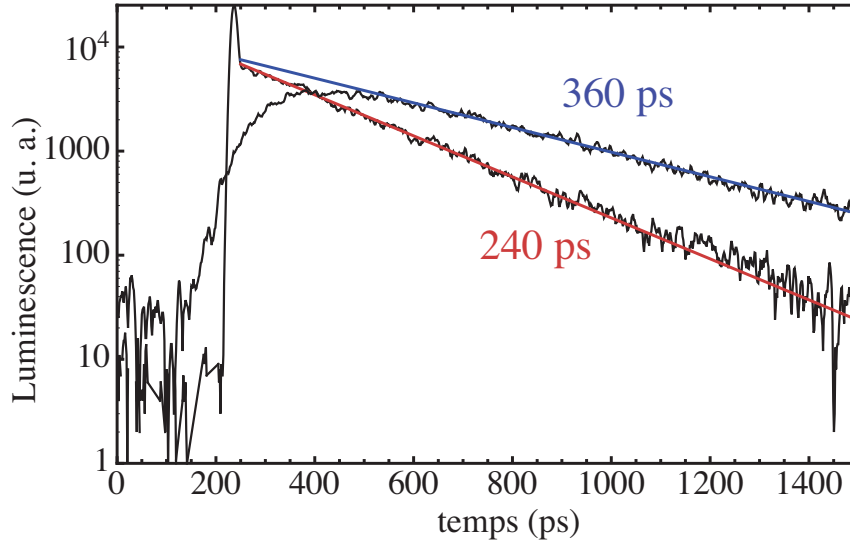


FIGURE 1.19 : Comparaison des temps de déclin sous excitation résonnante et non-résonnante. La droite bleue ajuste la décroissance non résonnante (360 ps) et la droite rouge (240 ps), la décroissance résonnante.

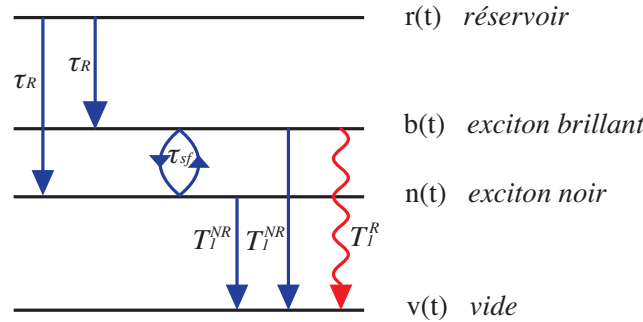


FIGURE 1.20 : Schéma du système à quatre niveaux modélisant l'excitation non résonnante d'une boîte quantique.

état propre d'exciton noir [80]. Une expérience d'absorption à deux photons permet de mesurer directement ce temps de *spinflip* [81]. De même, les excitons brillants peuvent, soit devenir noirs par un processus de *spinflip*, soit se recombiner non radiativement avec un temps T_1^{NR} , soit se recombiner radiativement avec un temps caractéristique T_1^R , qui est le temps de vie radiatif.

Le système contient donc trois paramètres ajustables, τ_R , qui est le temps de montée de la luminescence, et les deux temps, T_1^{NR} et τ_{sf} , permettant d'ajuster la décroissance de la luminescence. Le temps de vie radiatif T_1^R , mesuré dans les expériences résonnantes, n'est pas un paramètre ajustable.

Evolution des populations

Les populations du système à quatre niveaux sont régies par le système d'équations différentielles suivants :

$$\begin{cases} \dot{r}(t) = -\frac{r(t) (1 - b(t)) (1 - n(t))}{\tau_r} \\ \dot{b}(t) = \frac{r(t) (1 - b(t)) (1 - n(t))}{2\tau_r} + \frac{n(t) (1 - b(t))}{\tau_{sf}} - \frac{b(t) (1 - n(t))}{\tau_{sf}} - \frac{b(t)}{T_1^R} - \frac{b(t)}{T_1^{NR}} \\ \dot{n}(t) = \frac{r(t) (1 - b(t)) (1 - n(t))}{2\tau_r} + \frac{b(t) (1 - n(t))}{\tau_{sf}} - \frac{n(t) (1 - b(t))}{\tau_{sf}} - \frac{n(t)}{T_1^{NR}} \\ \dot{v}(t) = \frac{b(t)}{T_1^R} + \frac{b(t)}{T_1^{NR}} + \frac{n(t)}{T_1^{NR}} \end{cases} \quad (1.29)$$

avec les conditions initiales suivantes :

$$\begin{cases} r(0) = 0.1 \\ b(0) = 0 \\ n(0) = 0 \\ v(0) = 0 \end{cases} \quad (1.30)$$

La valeur précise de $r(0)$ n'influence pas la forme des solutions du système d'équations (1.29) tant que $r(0) < 1$, c'est-à-dire tant que les niveaux excitoniques ne sont pas saturés.

De plus, pour simplifier, notre modélisation ne prend pas en compte la formation de biexciton. Cela signifie que chacun des niveaux $b(t)$ et $n(t)$ ne peut pas accueillir plus d'un exciton à la fois et que les niveaux $b(t)$ et $n(t)$ ne peuvent pas être peuplés en même temps. Physiquement, cette hypothèse est valable en régime de faible excitation, ce qui est le cas étant donné le choix de $r(0) = 0.1$. Mathématiquement, on tient compte de cette hypothèse dans les équations (1.29) via la présence des facteurs de la forme $(1 - x(t))$ où $x(t)$ représente soit $b(t)$, soit $n(t)$. Il reste une dernière étape avant de pouvoir ajuster les courbes expérimentales avec le résultat du système d'équations (1.29) : il faut convoluer la population des excitons brillants $n(t)$ avec la réponse du système de détection. En effet, dans le cas d'une excitation non résonnante et contrairement au cas résonnant, il n'est pas possible d'exciter qu'une boîte quantique à la fois. Par conséquent, pour détecter la luminescence d'une boîte unique, il est nécessaire de travailler avec un réseau de 1200 traits par millimètre pour disperser la luminescence en fonction de la longueur d'onde d'émission et ainsi résoudre la luminescence de boîtes uniques. Or, plus on disperse spectralement le signal de luminescence, plus la résolution temporelle du système de détection se dégrade.

Le fait d'utiliser un réseau de 1200 traits augmente la résolution à 60 ps à la place de la résolution intrinsèque de la *streak camera* qui est de 2 ps.

Comme fonction de réponse du système de détection, nous choisissons une gaussienne de largeur totale à mi-hauteur $\delta t = 60$ ps. Après convolution, le signal de luminescence, $b_c(t)$, dû aux excitons brillants s'écrit de la manière suivante :

$$b_c(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} b(t-t') \frac{e^{-\frac{2t'^2}{\delta t^2}}}{\sqrt{\frac{\pi}{2}}\delta t} dt' \quad (1.31)$$

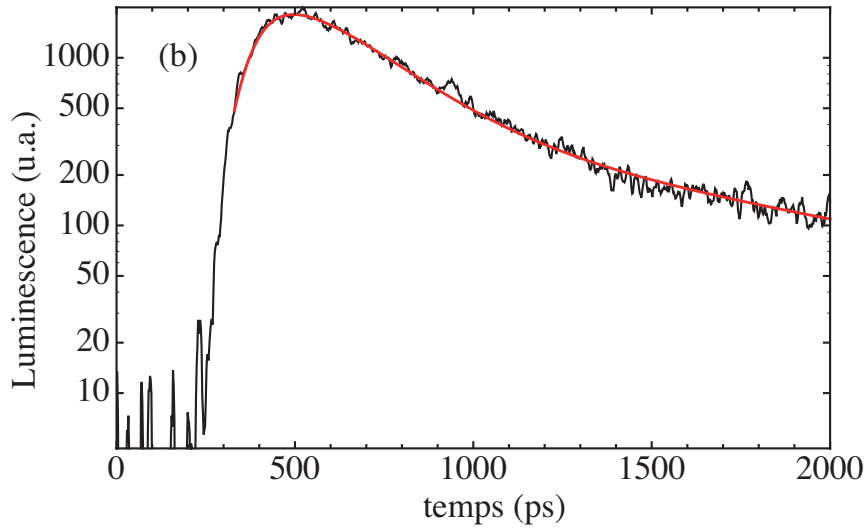


FIGURE 1.21 : Ajustement numérique du déclin non-résonnant avec les équations de taux (1.29).

La figure (1.21) montre l'ajustement numérique du spectre expérimental. Cet ajustement nous donne les valeurs suivantes des paramètres τ_R , τ_{sf} et T_1^{NR} , sachant que le temps de vie radiatif, T_1^R , a été fixé à 240 ps :

$$\begin{cases} \tau_R = 100 \text{ ps} \\ \tau_{sf} = 2200 \text{ ps} \\ T_1^{NR} = 2000 \text{ ps} \\ T_1^R = 240 \text{ ps} \end{cases}$$

Nous remarquons que les temps de vie non radiatif, T_1^{NR} , et le temps de *spinflip*, τ_{sf} , sont environ dix fois plus grands que le temps de vie radiatif, T_1^R . Cela justifie bien le fait de considérer le temps de décroissance résonnant comme étant le temps de vie radiatif, étant donné que les deux processus permis en plus de la recombinaison radiative (*spinflip*

et recombinaison non radiative) se produisent sur des échelles de temps caractéristiques beaucoup plus grandes. L'approximation de négliger ces deux derniers processus dans une expérience résonnante est donc bonne.

La présentation des excitations électroniques d'une boîte quantique nous a permis de mettre en évidence que la transition fondamentale $1S_h \leftrightarrow 1S_e$ était la plus isolée de l'environnement des boîtes. En effet, elle n'est pas élargie par la présence de transitions mixtes et l'absorption de phonons est extrêmement peu efficace. Les temps de relaxation, temps de vie et temps de cohérence, de cet état sont donc plus longs que ceux des états excités ; c'est pourquoi il est intéressant de manipuler optiquement cette transition. Dans les deuxième et troisième chapitres, présentant les échantillons et le montage expérimental, nous montrons comment tirer parti de l'optique guidée pour exciter de manière résonnante la transition fondamentale et détecter, à la même énergie, la luminescence provenant d'une boîte individuelle.

Chapitre 2

Échantillons pour l'optique guidée

Sommaire

2.1	Enjeux de l'optique guidée	40
2.2	Boîtes quantiques issues de fluctuations d'interfaces	42
2.2.1	Structure	42
2.2.2	Propriétés optiques du guide d'onde	44
2.2.3	Extraction de la luminescence	46
2.3	Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par <i>MBE</i> . . .	49
2.3.1	Structure	49
2.3.2	Propriétés optiques du guide d'onde	51
2.3.3	Extraction de la luminescence	54
2.4	Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par <i>MOCVD</i> .	55
2.4.1	Structure	55
2.4.2	Propriétés optiques des guides d'onde	57
2.4.3	Extraction de la luminescence	58

Nous avons étudié trois types d'échantillons différents. Un premier type, appelé A, est constitué de boîtes quantiques de GaAs sur GaAlAs formées par les fluctuations d'épaisseur d'un fil quantique. Leur croissance est réalisée par *MOCVD*, acronyme de "*metal-organic chemical vapour deposition*", sur un substrat de GaAs où des sillons en forme de V ont préalablement été gravés par attaque chimique.

Le deuxième type d'échantillons, dénommé B, contient des boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs sur GaAs obtenues par épitaxie par jets moléculaires (*MBE*, acronyme de "*molecular beam epitaxy*") basée sur le mode de croissance Stranski-Krastanov.

Enfin, le troisième type d'échantillons, appelé C, est également constitué de boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs sur GaAs, dont la croissance est réalisée par *MOCVD* sur le même type de substrat que les échantillons A.

Nous détaillerons la structure particulière des échantillons dans les sections 2.2, 2.3 et 2.4, mais, avant cela, nous montrons pourquoi nous avons fait le choix d'insérer ces trois types de boîtes quantiques dans le coeur de guides d'onde unidimensionnels.

2.1 Enjeux de l'optique guidée

La manipulation optique de l'état d'une paire électron-trou confinée dans une boîte quantique n'est possible que si les photons du champ électromagnétique incident ont la même énergie que la transition électronique qu'on veut manipuler. Or, l'intensité moyenne de l'excitation laser est beaucoup plus grande que l'intensité de la luminescence émise par une boîte quantique unique. Typiquement, il faut que le nombre de photons moyen du champ incident soit de quelques millions pour qu'une boîte émette un seul photon. Le calcul est détaillé dans le quatrième chapitre. Par conséquent, un montage de microphotoluminescence standard où l'excitation et la luminescence empruntent le même chemin ne permet pas de séparer les quelques photons émis par une boîte quantique de ceux provenant de la réflexion du laser sur la surface de l'échantillon.

Essentiellement, trois stratégies sont exploitées afin de séparer les photons du laser et ceux de luminescence.

Premièrement, exciter de manière quasi-résonnante [82] permet de séparer spectralement l'émission du laser d'excitation. Dans ce cas, les photons laser sont décalés à une énergie plus haute que celle de la paire électron-trou d'une quantité strictement égale à l'énergie d'un phonon LO : 36 meV pour GaAs et 32 meV pour InAs. Ce type de stratégie permet de réaliser des expériences résolues en polarisation mais ne permet pas de réellement manipuler l'état de la paire électron-trou.

Deuxièmement, on peut insérer les boîtes quantiques dans des microcavités [25, 24]. L'excitation se fait dans le plan de la couche de mouillage, la microcavité formant un guide

d'onde bidimensionnel dans cette direction et la détection est réalisée orthogonalement à l'excitation.

Enfin, troisièmement, une solution consiste à insérer les boîtes quantiques dans un guide d'onde unidimensionnel [23]. Tout comme précédemment, cette configuration permet de séparer spatialement l'excitation et la détection de la luminescence. En effet, le laser est couplé au guide d'onde unidimensionnel et reste confiné dans le guide jusqu'à la sortie. La luminescence, quant-à elle, est collectée perpendiculairement au guide d'onde par la surface de l'échantillon.

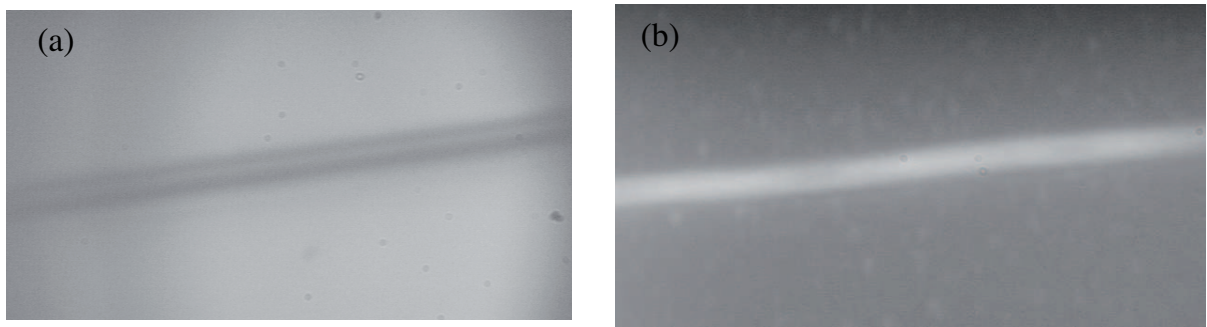


FIGURE 2.1 : (a) Image de la surface d'un guide d'onde éclairée par une lampe blanche. (b) Luminescence émise par la couche de mouillage excitée par la lumière guidée.

La figure (2.1) montre deux images de la surface d'un échantillon de boîtes quantiques d'InAs sur GaAs. Sur la seconde image, la luminescence de la couche de mouillage, provenant uniquement de la zone de l'échantillon insérée dans le guide d'onde, montre le confinement unidimensionnel de l'excitation laser. Cette configuration présente deux avantages : d'une part, peu de boîtes quantiques sont excitées par le laser, et, d'autre part, le couplage entre les boîtes quantiques et le mode optique guidé est optimisé par rapport à la situation d'un guide d'onde planaire.

Idéalement, dans une telle géométrie d'excitation et de détection orthogonales, les photons détectés ne proviennent que de la luminescence des boîtes quantiques. Dans la pratique, ceci n'est observé qu'à faible puissance d'excitation, typiquement moins de $10 \mu\text{W}$ en amont du guide d'onde. En effet, l'accroissement de la puissance incidente entraîne l'augmentation du nombre de photons laser diffusés par les interfaces du guide et par la facette d'entrée du guide.

Afin d'augmenter le rapport entre les photons de luminescence et les photons diffusés, nous cherchons à améliorer les trois points suivants. Premièrement, la qualité des interfaces entre les différentes couches constituant le guide d'onde. On cherche également à optimiser les épaisseurs du coeur et de la gaine du guide de telle sorte que le mode guidé soit le plus confiné possible. Un fort confinement du mode dans le coeur permet de diminuer les pertes du guide causées par diffusion à l'interface entre la gaine et l'air qui présente

souvent la rugosité la plus importante à cause des attaques chimiques qu'elle subit lors de la fabrication.

Deuxièmement, le couplage du mode gaussien du laser au mode guidé est optimisé en plaçant l'objectif qui couple la lumière dans le guide sur des platines de déplacement piézoélectriques stabilisées en position.

Troisièmement, l'efficacité d'extraction de la luminescence des guides d'onde doit être maximisée. De fait, les guides d'onde étant constitués de matériaux semi-conducteurs dont les indices de réfraction sont élevés, de l'ordre de 3, le module du coefficient de réflexion du champ électrique sur une interface plane air/semi-conducteur est de l'ordre de 50 %. De plus, à cause du saut d'indice très grand et de la forme des guides d'onde, le cône d'extraction à l'intérieur duquel la luminescence émise peut sortir du guide possède un angle solide très petit. Récemment, nous avons tenté d'adapter la forme des guides dans les échantillons C pour tirer parti d'un effet d'interférences constructives entre des ondes évanescentes à l'interface air/semi-conducteur qui permettrait d'atteindre un taux d'extraction de plus de 50 %.

Dans la suite, nous présentons en détail les structures et les caractéristiques des trois types d'échantillons étudiés.

2.2 Boîtes quantiques issues de fluctuations d'interfaces

2.2.1 Structure

Ces boîtes quantiques résultent du confinement des électrons et des trous le long d'un fil quantique engendré par les fluctuations d'épaisseur de ce fil. Les fils sont des hétérostructures non-dopées formées d'une couche de GaAs insérée entre deux couches de GaAlAs. La différence de *gap* entre ces deux matériaux, 600 meV, est à l'origine du confinement des porteurs dans le GaAs, matériau possédant le plus petit *gap*.

La croissance d'un fil quantique s'obtient selon le protocole suivant [83] : des sillons en forme de V sont gravés dans un substrat de GaAs par photo-lithographie. Ces sillons parallèles entre eux sont séparés de leur plus proche voisin de 4 μm et sont profonds de 2 μm . Ensuite, les différentes couches sont déposées par une technique de dépôt en phase vapeur de composés organo-métalliques : en premier, une couche d'alliage $\text{Al}_{0.65}\text{GaAs}$ d'épaisseur 0.6 μm est déposée, puis une couche de $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ de 0.1 μm d'épaisseur, jouant le rôle de la barrière de potentiel, le puits quantique de GaAs et, de nouveau, une couche de $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ et une autre de $\text{Al}_{0.65}\text{GaAs}$.

La figure (2.2) représente le schéma de ce type d'échantillon où l'empilement des différentes couches semiconductrices apparaît clairement. Les alliages de $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ et $\text{Al}_{0.65}\text{GaAs}$ forment, respectivement, le coeur et la gaine du guide d'onde. La dernière

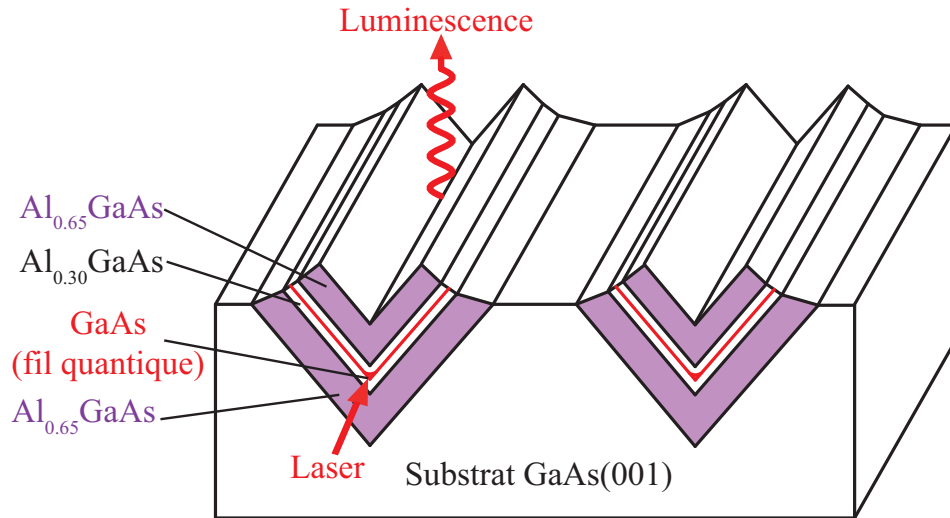


FIGURE 2.2 : Schéma d'un échantillon en V contenant des boîtes quantiques de GaAs sur GaAlAs provenant de fluctuations d'épaisseur d'un fil quantique (en rouge au fond du V) aux interfaces. Le fil quantique est épitaxié au centre d'un guide d'onde 1D constitué d'un coeur en $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ et d'une gaine en $\text{Al}_{0.65}\text{GaAs}$.

étape, dont le but est de conserver uniquement les fils quantiques, consiste en une attaque chimique sélective destinée à supprimer les puits de GaAs sur les facettes [100] et [111]. Cette étape permet d'observer uniquement la luminescence émise par le fil et les boîtes quantiques, sans être gêné par celle des puits de GaAs, très proche en énergie.

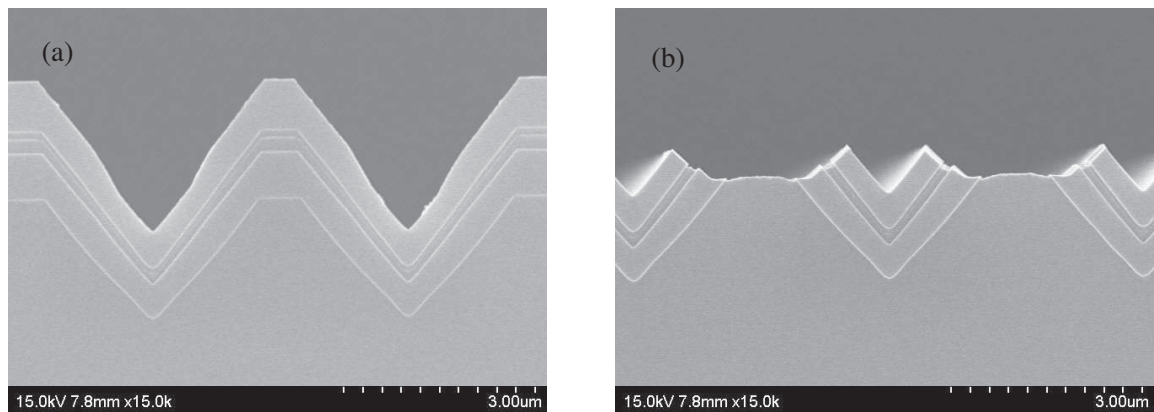


FIGURE 2.3 : Images obtenues par microscopie électronique en transmission de la coupe transversale d'un échantillon de boîtes quantiques de GaAs sur AlGaAs (a) avant attaque chimique des puits quantiques, et (b) après attaque chimique.

La figure (2.3) montre deux images d'un échantillon obtenues par microscopie électronique en transmission. La première, (a), est une coupe perpendiculaire aux plans des couches, avant attaque chimique et la seconde, (b), après attaque chimique. Les différentes

couches apparaissent clairement sur ces images.

Le fil quantique se loge au fond du V où l'épaisseur de GaAs est plus grande que sur les flancs du V. En effet, par *MOCVD*, la vitesse de croissance du GaAs au fond des V est plus grande que sur les facettes cristallographiques [111]. Ainsi, les porteurs sont également confinés dans la direction latérale Y parce que l'énergie de confinement est plus petite dans la région où le puits quantique est le plus épais. Les dimensions transversales typiques des fils quantiques sont les suivantes : 5 nm d'épaisseur selon Z et 15 nm de large selon Y.

Le confinement électronique à basse température dans la direction du fil est dû aux fluctuations d'épaisseur de GaAs, de plus ou moins une monocouche, qui apparaissent aléatoirement lors de la croissance de la structure. Typiquement, l'épaisseur de GaAs fluctue entre 17 et 18 monocouches tout les 50 nm en moyenne. Les régions du fil les plus épaisses constituent des puits de potentiel dont l'énergie de confinement est de l'ordre de 10 meV. La figure (2.4) schématise le confinement dans la direction du fil engendré par les fluctuations d'épaisseur. Comme nous l'avons remarqué dans le premier chapitre, ce confinement est très faible et ne permet pas de localiser les porteurs lorsque la température dépasse 18 K.

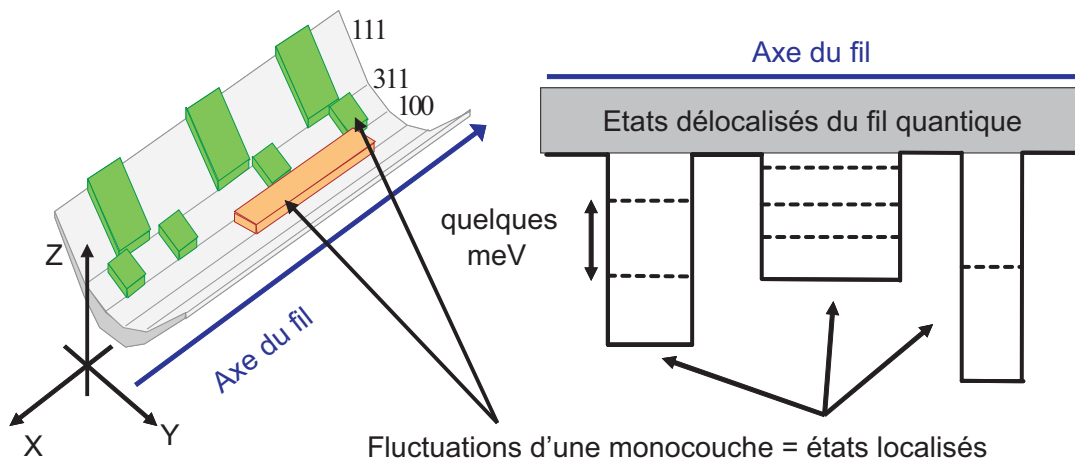


FIGURE 2.4 : (a) Représentation schématisée des boîtes quantiques résultant de fluctuations d'épaisseur d'un fil quantique. (b) Etats localisés et délocalisés le long du fil quantique.

2.2.2 Propriétés optiques du guide d'onde

La géométrie du guide d'onde diélectrique en forme de V est rappelée sur la figure (2.5).

L'image (a) montre une coupe transversale d'un guide d'onde obtenue par microscopie électronique en transmission. La figure (b) représente schématiquement la même coupe transversale en faisant apparaître, d'une part, le coeur du guide constitué d' $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$

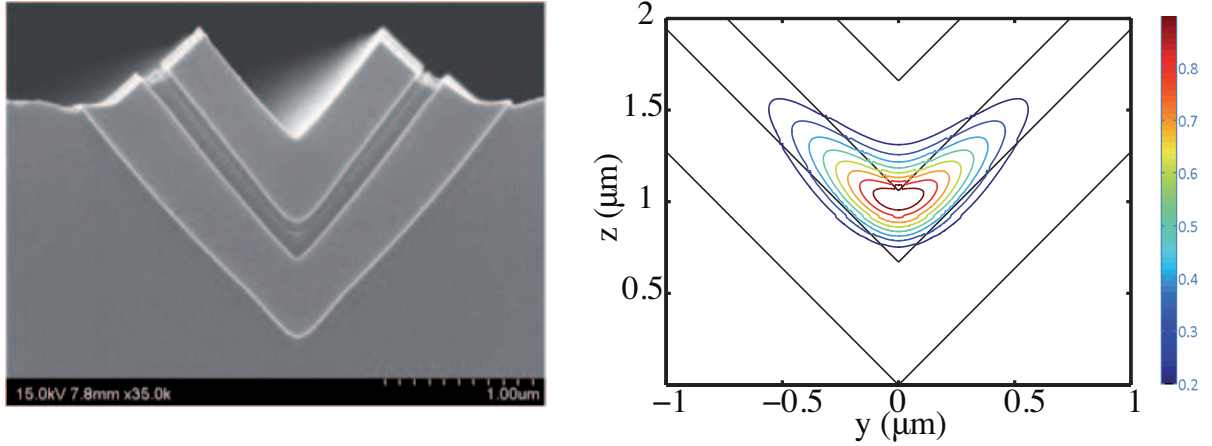


FIGURE 2.5 : (a) Image TEM de la coupe transversale d'un guide d'onde. (b) Profil d'intensité du mode fondamental d'un guide d'onde en V.

dont l'indice de réfraction, $n_{0.30}$, vaut 3.50, et d'autre part, la gaine, constituée par l'alliage $\text{Al}_{0.65}\text{GaAs}$ dont l'indice de réfraction, $n_{0.65}$, a pour valeur 3.34. Les lignes de niveaux sur cette figure montrent le profil d'intensité du mode fondamental du guide. Le calcul de ce profil ne prend pas en compte la présence du fil quantique de GaAs. Le fait de le négliger est justifié étant donné, d'une part, sa faible épaisseur, de l'ordre de 1 nm, et d'autre part, le faible saut d'indice entre les deux matériaux $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ et GaAs, égal à 0.13, l'indice de réfraction n_0 du GaAs étant égal à 3.63. De plus, le mode optique guidé épouse la forme en V de l'échantillon et l'intensité du champ électrique est maximale au centre du V, là où se situent approximativement les boîtes quantiques. Puis, il décroît en suivant les deux plans [111] de $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ orientés chacun d'un angle de $\pm 35^\circ$ par rapport à la verticale.

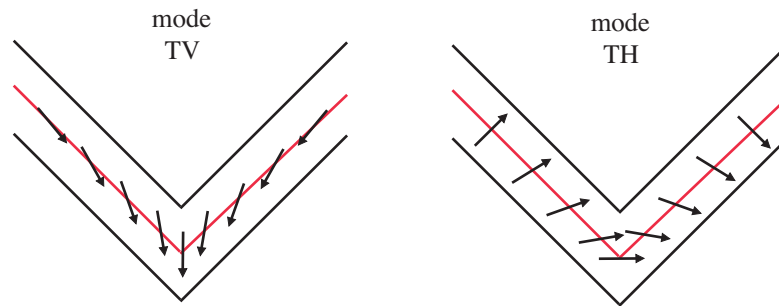


FIGURE 2.6 : Schéma des directions de polarisation du champ électrique des deux modes fondamentaux d'un guide d'onde en V.

Il existe deux modes propres de polarisation [84], schématisés sur la figure (2.6), qui sont des combinaisons des modes plans TE et TM. Ils sont dénommés, pour le premier, mode transverse vertical (TV) et, pour le second, mode transverse horizontal (TH), en

référence à la direction du champ électrique au centre du V. La structure de ces modes est la suivante : loin du centre du V, le mode TV possède un champ électrique polarisé dans le plan des couches, c'est-à-dire orienté à $\pm 35^\circ$ de la verticale et le mode TH est polarisé perpendiculairement aux couches. En se rapprochant, de gauche à droite, du centre du V, le champ du mode TV passe continûment d'une polarisation orientée de l'angle de $+35^\circ$ à la polarisation orientée d'un angle de -35° . Exactement au centre du V, ce mode présente donc une polarisation verticale. Le mode TH évolue spatialement de la même manière : il se retourne progressivement en présentant une polarisation horizontale au centre du V.

La distance caractéristique sur laquelle le basculement de la polarisation de ces deux modes s'effectue est de quelques microns, distance largement supérieure à l'extension latérale des boîtes quantiques situées au centre du V. Par conséquent, il est légitime de considérer que, si un seul de ces modes est excité par le laser, le champ électrique perçu par les boîtes sera soit vertical pour le mode TV, soit horizontal pour le mode TH. Ces deux directions étant, à priori, également les directions de polarisation des états propres des boîtes quantiques, il est donc possible d'exciter un seul état propre des boîtes à la fois. Néanmoins, nous verrons dans le quatrième chapitre que cela n'est pas toujours vérifié à cause des contraintes qui ont pour effet, entre autres, d'incliner les axes propres des états électroniques par rapport aux axes cristallographiques. Dans ce cas, le laser, toujours polarisé selon l'axe cristallographique, excite simultanément les deux états propres des boîtes quantiques.

2.2.3 Extraction de la luminescence

La luminescence étant collectée par la surface des échantillons avec un objectif de microscope d'ouverture numérique égale à 0.5, il est important de maximiser l'efficacité d'extraction de la luminescence par cette surface.

La figure (2.7) montre un spectre typique de micro-luminescence de boîtes quantiques de GaAs sous excitation impulsionnelle non résonnante. Les raies les plus intenses ont une intensité intégrée de seulement 150 coups/s. Cette faible efficacité d'extraction de la luminescence de boîtes individuelles pose deux problèmes : premièrement, les mesures de décroissance temporelle de la luminescence nécessitent de longs temps de pose, alors que la stabilité du montage ne permet pas de rester, sans ré-optimisation du signal, sur la même boîte quantique pendant plus d'une heure. Deuxièmement, dans les expériences sous excitation résonnante, le rapport entre l'intensité de la luminescence et l'intensité du laser fuyant du guide d'onde est souvent trop faible pour mesurer des signaux de luminescence à fortes puissances d'excitation. C'est pour ces raisons qu'il est important de caractériser l'extraction de la luminescence de nos échantillons et d'imaginer des structures permettant de l'augmenter.

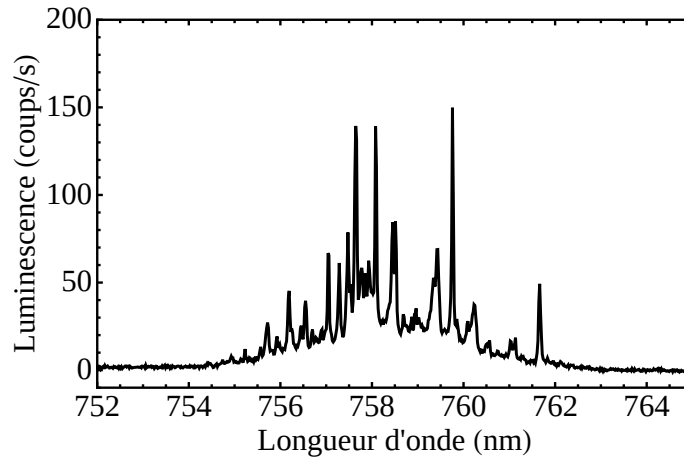


FIGURE 2.7 : Spectre de luminescence de boîtes quantiques de GaAs obtenu sous excitation impulsionnelle non résonnante.

Pour les trois types d'échantillons avec lesquels nous avons travaillé, des simulations de l'émission d'un dipôle électrique polarisé linéairement selon l'axe Y (axe horizontal sur les schémas) ont été réalisées. Le choix de cette polarisation est déterminé à la fois par les états propres des boîtes quantiques de polarisation linéaire X et Y et par la polarisation linéaire selon l'axe Y du laser incident qui excite donc l'état propre Y des boîtes quantiques. De fait, ce dernier est le seul état propre qu'on puisse à la fois exciter avec le mode optique guidé et détecter par la surface de l'échantillon, parce que cet axe constitue l'intersection entre le plan de polarisation du faisceau d'excitation et le plan de polarisation de la luminescence détectée perpendiculairement. Les simulations, montrées sur les figures (2.8), (2.14), (2.22) et (2.19), ont été effectuées avec le logiciel meep [85] qui permet de calculer le champ électromagnétique en utilisant une méthode *FDTD* (*finite-difference time-domain*).

La figure (2.8a) montre l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle situé dans le guide d'onde au fond du V. Cette simulation fait apparaître clairement trois lobes d'émission : un lobe central, peu intense, dirigé orthogonalement à la surface et deux lobes latéraux, plus intenses. Au dessus de ces trois lobes, loin de la surface, on remarque la présence d'un front d'onde très peu intense, formé par la lumière issue du fond du V qui est sortie du semi-conducteur avant les deux lobes latéraux. Le lobe central est peu intense à cause de la réflexion totale interne subie par la luminescence sur les flancs [111] du V. La plus grande partie de la lumière extraite est contenue dans les deux lobes latéraux qui sont formés par la luminescence guidée dans la couche de $\text{Al}_{0.3}\text{GaAs}$ située sur les deux flancs [111] du V et qui sort par la surface résultant de la gravure chimique. En supposant que la surface est gravée de manière orthogonale au plan [111], l'angle d'émission de ces lobes latéraux par rapport à la verticale est directement donné par l'angle formé par le

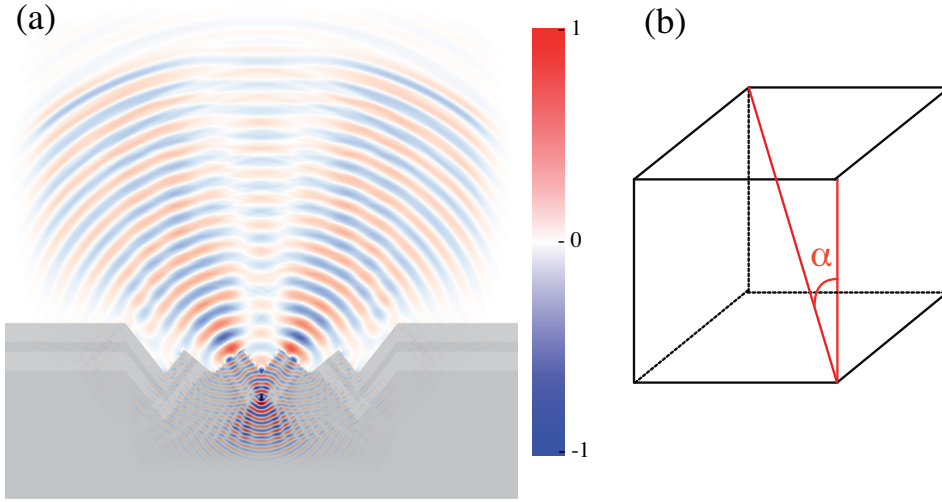


FIGURE 2.8 : (a) Simulation *FDTD* de l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle unique inséré dans une structure guidante en V. (b) maille cubique.

plan cristallographique [111] et la verticale, c'est-à-dire la moitié de l'ouverture du V. On commence par calculer l'angle α entre les plans [001] et [111]. Par définition de ces plans, cela revient à calculer l'angle α indiqué sur le schéma de la maille cfc (figure (2.8)) entre l'arête de longueur a et le diagonale du cube de longueur $\sqrt{3} a$. Cet angle vaut donc :

$$\alpha = \arccos \left(\frac{1}{\sqrt{3}} \right) = 54.7^\circ \quad (2.1)$$

L'angle d'ouverture, α_v , du V est égal au double du complémentaire de l'angle α , c'est-à-dire :

$$\alpha_v = 2 (90 - 54.7) = 70.6^\circ \quad (2.2)$$

Les directions des deux lobes latéraux d'émission sont donc $\pm 35.3^\circ$ par rapport à la verticale. L'objectif de microscope de collection de la luminescence possédant une ouverture numérique de 0.5, l'angle total de collection est donc de 60° . Par conséquent, un tel objectif ne peut collecter que la moitié de la lumière continue dans les lobes latéraux. Pour donner un ordre de grandeur de la quantité de lumière qu'on peut extraire par rapport à la totalité de la lumière émise par le dipôle, il faut calculer l'angle critique, θ_c , de réflexion totale interne entre un milieu d'indice de réfraction égal à 1, l'air, et un milieu d'indice 3.34 constitué par la gaine du guide en $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$. Cet angle est donné par la relation suivante :

$$\theta_c = \arcsin \left(\frac{1}{\sqrt{3.34}} \right) = 17.5^\circ = 0.30 \text{ rad} \quad (2.3)$$

De plus, le rapport des aires d'une calotte sphérique, $\mathcal{A}_{\text{calotte}}$, interceptée par un cône

d'angle θ_c et de la sphère entière, $\mathcal{A}_{sphere}$, est donnée par :

$$\frac{\mathcal{A}_{calotte}}{\mathcal{A}_{sphere}} = \frac{1 - \cos \theta_c}{2} \quad (2.4)$$

D'après le schéma (2.8b), on peut considérer que l'émission du dipôle se fait dans deux angles solides de π stéradians chacun, un vers le haut et un vers le bas. De plus, le coefficient de réflexion R en énergie à l'interface air/ $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ étant de 30%, la fraction de l'intensité lumineuse extraite de l'échantillon, $I_{extrait}$, par sa surface sur l'intensité totale émise par le dipôle, I_{emis} , est donc la suivante :

$$\begin{aligned} \frac{I_{extrait}}{I_{emis}} &= 2 \times 0.7 \times (1 - \cos \theta_c) \\ &= 2 \times 0.7 \times (1 - \cos 0.30) \\ &= 6\% \end{aligned} \quad (2.5)$$

L'objectif en collecte la moitié, c'est-à-dire 3%, valeur typique d'efficacité d'extraction pour ce type de matériau. En vue d'augmenter cette valeur, deux pistes sont actuellement suivies. Premièrement, en gravant un peu plus profondément les puits quantiques, X.L. Wang [86] a obtenu une efficacité d'extraction plus grande, étant donné que, d'une part, la distance de l'émetteur à l'interface est plus courte et que, d'autre part, l'angle d'incidence de la luminescence sur l'interface est suffisamment petit pour réduire l'effet de la réflexion totale interne. Deuxièmement, l'autre piste est présentée dans la section 2.4 de ce chapitre, où nous présentons des nouveaux échantillons de boîtes quantiques pour lesquelles une efficacité d'extraction de 50% a été atteinte dans le cas de l'émission d'un puits quantique [87].

2.3 Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par *MBE*

2.3.1 Structure

Le deuxième type d'échantillon contient des boîtes quantiques d'InAs épitaxiées sur un substrat de GaAs. Ces boîtes croissent de manière auto-organisée selon le mode de croissance Stranski-Krastanov, permis à la fois par *MBE* et *MOCVD*. Les boîtes d'InAs des échantillons B sont épitaxiées par *MBE*, au laboratoire de photonique et de nanostructures (LPN), alors que les échantillons C contenant aussi des boîtes d'InAs sont fabriqués par *MOCVD*, au *nanotechnology research institute*, au Japon. La méthode d'épitaxie par jet moléculaire consiste à déposer, à partir de vapeurs d'atomes, une couche d'InAs sur un substrat cristallin de GaAs. Dans le mode Stranski-Krastanov, le dépôt d'InAs commence

par former une couche atomique complète à la surface du substrat de GaAs. Cependant, à cause de la différence de paramètres de maille entre le réseau cristallin du substrat et la couche d'InAs, cette dernière doit adapter son paramètre de maille à celui du GaAs provoquant une compression dans le plan de la couche. Si bien que, à partir d'une certaine épaisseur, dite critique, les contraintes accumulées sont suffisamment importantes pour provoquer la nucléation d'îlots d'InAs sur la première monocouche d'InAs, appelée couche de mouillage.

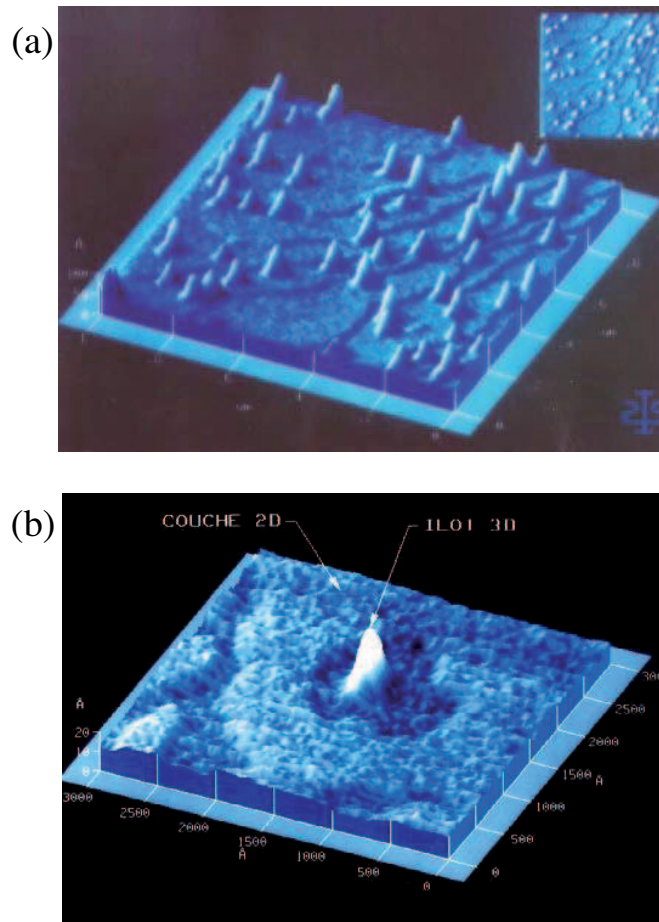


FIGURE 2.9 : Image *AFM* réalisée par J.M. Moison

La figure (2.9) montre deux images *AFM* de telles boîtes quantiques. L'image (b), un zoom sur une boîte quantique unique, montre clairement que l'îlot tridimensionnel au centre de l'image s'est formé à partir des atomes de la couche de mouillage l'entourant. Par conséquent, la formation de boîtes quantiques sous l'effet de contraintes s'accompagne d'une croissance irrégulière de la couche de mouillage au voisinage des boîtes quantiques. La déplétion locale de la couche de mouillage peut entraîner la présence de défauts d'interfaces dans cette couche créant des puits de potentiels peu profonds, mais néanmoins capables de piéger les porteurs à basse température.

Toutefois, les boîtes quantiques des images *AFM* ne sont pas optiquement actives à cause des liaisons pendantes laissées à la surface des boîtes qui créent un canal de recombinaison non-radiative très efficace. Il faut donc les encapsuler dans une matrice de GaAs, ce qui modifie leur morphologie. Les boîtes recouvertes de GaAs prennent alors une forme de lentille de hauteur 5 nm et de diamètre 20 nm.

Afin d'obtenir des densités de boîtes suffisamment faibles, permettant de résoudre spatialement et spectralement l'émission de boîtes individuelles, les échantillons que nous avons étudiés possèdent un gradient d'épaisseur d'InAs déposé. Sur ce type d'échantillons, il y a trois zones de croissance. Tout d'abord, la zone, dite 2D, qui ne comporte qu'une mince couche d'InAs qui n'a pas encore transité vers la formation d'îlots 3D et ne comporte donc pas de boîtes quantiques. Ensuite, la zone, dite 3D, où suffisamment d'InAs a été déposé pour permettre la formation des boîtes quantiques. Cette zone contient une densité de boîtes très grande, de l'ordre de $10^{12}/\text{cm}^2$, ce qui ne permet pas d'isoler facilement l'émission individuelle des boîtes. Enfin, à la frontière de ces deux régions, se trouve une zone, dite frontière, dont l'épaisseur est voisine de l'épaisseur critique pour laquelle la couche d'InAs est au seuil de la transition 2D-3D [88]. La densité de boîtes quantiques y est non nulle mais faible, entre 10^7 et $10^{10}/\text{cm}^2$. Les boîtes quantiques sur lesquelles nous avons travaillé se situent en zone frontière de façon à pouvoir isoler spectralement les raies homogènes de luminescence des boîtes.

2.3.2 Propriétés optiques du guide d'onde

Afin de réaliser un guide d'onde unidimensionnel, comme celui représenté sur la figure (2.10), la structure de l'échantillon est plus complexe que celle décrite précédemment.

La couche de mouillage et les boîtes quantiques d'InAs sont encapsulées entre deux couches de GaAs d'épaisseur identique. Ces trois couches, d'épaisseur totale $0.6 \mu\text{m}$ forment le coeur du guide d'onde, l'indice de réfraction du GaAs étant égal à 3.63. La gaine du guide est constituée de deux couches de $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ d'indice égal à 3.4 et situées de part et d'autre du coeur du guide, d'épaisseur de $1 \mu\text{m}$ chacune. Cette structure forme un guide d'onde planaire dans lequel la lumière, très focalisée sur la facette d'entrée, se propage dans l'ensemble du plan contenant les boîtes quantiques. Dans une telle géométrie planaire, la densité d'énergie électromagnétique diminue quand la distance mesurée depuis l'entrée du guide d'onde augmente. La puissance du laser d'excitation doit, par conséquent, être augmentée lorsqu'on travaille loin de la facette d'entrée. Or, il est préférable de travailler en utilisant une excitation de puissance la plus petite possible afin de diminuer la lumière parasite engendrée par les différentes diffusions aux interfaces des guides d'onde et au niveau du couplage du laser à l'entrée du guide. C'est pourquoi la couche supérieure de l'alliage de $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ est gravée chimiquement après déposition sur

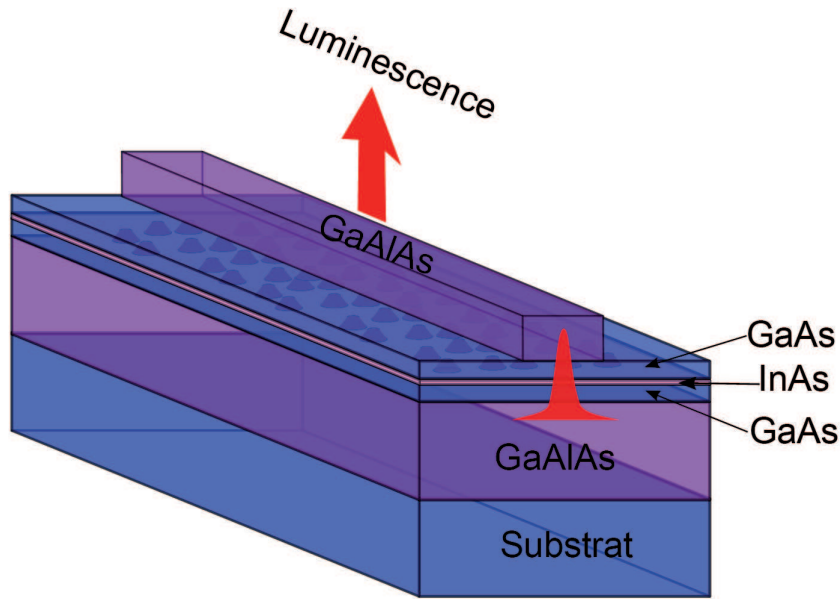


FIGURE 2.10 : Schéma d'un échantillon contenant des boîtes quantiques auto-organisées d'InAs sur GaAs (plots bleus). La couche de mouillage d'InAs est comprise entre deux couches de GaAs formant le coeur du guide d'onde d'épaisseur 0.6 nm. La gaine en AlGaAs est constituée d'une couche inférieure et d'un ruban supérieur.

la surface de masques formant des rubans, de largeur comprise entre 0.5 et 2 μm , sur toute la longueur de l'échantillon, espacés de 50 μm . Quand la gravure est terminée, le masque protecteur est dissous et des rubans de largeur de 2 μm constitués en $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ parcourent la longueur de l'échantillon.

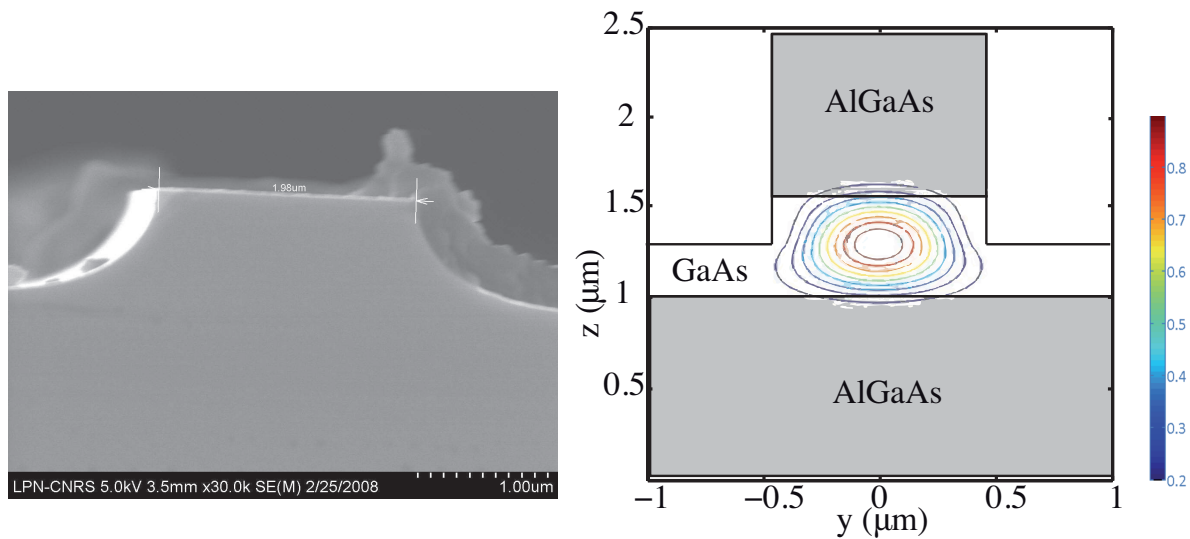


FIGURE 2.11 : (a) Image *TEM* de la coupe transversale d'un guide d'onde. (b) Profil d'intensité du mode fondamental du guide d'onde.

L'image *TEM* (2.11a) montre une coupe transversale d'un ruban. A cause du grand saut d'indice entre l'alliage $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ et l'air, ces rubans ont pour effet de confiner la lumière latéralement, créant ainsi un mode optique guidé unidimensionnel enterré exactement sous le ruban, comme le montre la figure (2.11b) représentant le profil d'intensité du mode guidé. Dans cette structure unidimensionnelle, la densité d'énergie électromagnétique reste quasiment constante tout le long du guide d'onde lorsque l'énergie de l'excitation est inférieure à l'énergie du *gap* pour ne pas être absorbée par les barrières de $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ et la couche de mouillage.

Dans la première génération d'échantillon de ce type, le ruban supérieur d' $\text{Al}_{0.6}\text{GaAs}$ est orienté de telle manière à ce que le mode optique guidée se propage perpendiculairement au plan de clivage des facettes correspondant à l'entrée et la sortie du guide d'onde. Or, à cause du coefficient de réflexion en intensité élevé à l'interface GaAs/air, égal à 30%, une partie de l'impulsion lumineuse guidée se réfléchit sur cette interface et cette réflexion, elle-même guidée, peut modifier le couplage de l'impulsion avec les boîtes quantiques.

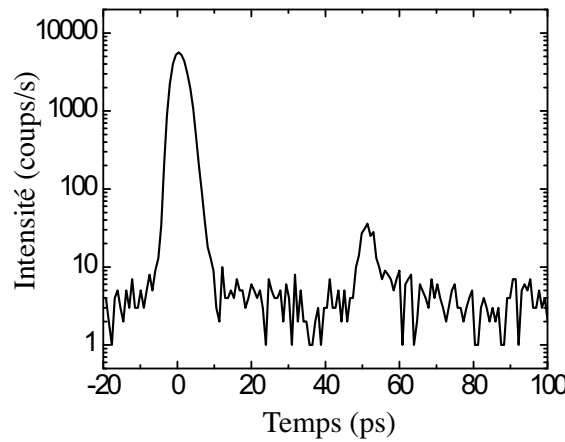


FIGURE 2.12 : Intensité lumineuse en sortie du guide d'onde excitée par une seule impulsion laser.

La figure (2.12) montre une courbe représentant l'intensité lumineuse du laser à la sortie du guide d'onde excitée par une seule impulsion en fonction du temps, obtenue avec une *streak camera*. On remarque que deux impulsions sont transmises par le guide, séparées par un délai δ de 50 ps et dans un rapport d'intensité de 1%. Cette courbe nous montre que l'impulsion qui arrive sur l'interface de sortie du guide d'onde à l'instant $t = 0$ est en partie réfléchiée et en partie transmise. L'impulsion sortant à l'instant $t = 50$ ps correspond à la partie réfléchiée de l'impulsion qui effectue un aller-retour supplémentaire dans le guide d'onde. En effet, la distance L parcourue par cette impulsion dans le guide

en une durée de 50 ps vaut :

$$L = \frac{\delta c}{n_0} = 4.3 \text{ mm} \quad (2.6)$$

Cette distance est tout-à-fait compatible avec un aller-retour dans le guide d'onde de longueur 2 mm environ.

Par ailleurs, sachant que la seconde impulsion subit deux réflexions, le coefficient de réflexion, R_{exp} , mesurée expérimentalement vaut donc :

$$R_{exp} = \sqrt{1\%} = 10\% \quad (2.7)$$

Cette valeur, inférieure à la valeur théorique, peut entraîner tout de même des perturbations au niveau des mesures d'intensité de la luminescence des boîtes quantiques.

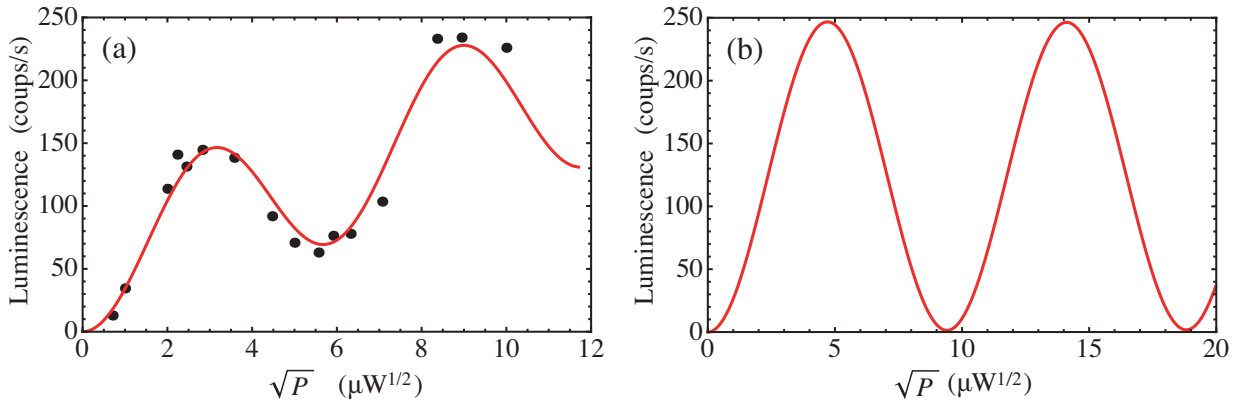


FIGURE 2.13 : (a) Oscillations de Rabi obtenues sur une boîte dans un guide non-incliné. L'ajustement numérique tient compte de la réflexion à la sortie du guide. (b) Simulation des oscillations de Rabi sans réflexion à la sortie du guide.

La figure (2.13a) illustre l'influence de cette réflexion sur les mesures d'oscillations de Rabi présentées plus en détails dans le chapitre 4. La réflexion à la sortie du guide peut avoir pour effet d'ajouter un fond à la courbe d'oscillations de Rabi, comme le montre la courbe expérimentale (a) ajustée numériquement par la courbe en trait continu rouge. La simulation d'oscillation de Rabi (b), calculée sans tenir compte de la réflexion en sortie du guide, ne présente pas ce comportement.

Afin de diminuer le retour de la lumière sur la face de sortie du guide, dans la deuxième génération d'échantillons, les rubans sont inclinés d'un angle de 7° par rapport au plan cristallographique de clivage.

2.3.3 Extraction de la luminescence

La simulation présentée sur la figure (2.14) montre que la luminescence provient principalement de la surface [001] du *ridge*. L'efficacité d'extraction dans une telle structure est

donc proche de l'efficacité d'extraction d'une interface plane semi-conducteur/air, donnée par l'expression (2.5), à savoir 3%.

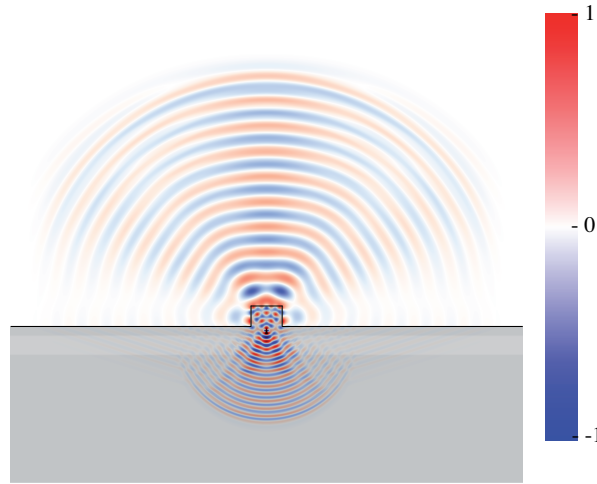


FIGURE 2.14 : Simulation FDTD de l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle unique inséré dans un guide d'onde.

Cette valeur théorique est confirmée par l'intensité de la luminescence des boîtes quantiques individuelles d'InAs, montrée sur le spectre (2.15c), qui est comprise entre 50 et 100 coups/s, valeurs similaires à celles mesurées sur l'échantillon A. Par ailleurs, les deux autres spectres font bien apparaître la luminescence de la couche de mouillage (spectre (2.15a)) et le continuum lié aux transitions mixtes (spectre (2.15b)).

2.4 Boîtes quantiques auto-assemblées épitaxiées par *MOCVD*

2.4.1 Structure

Le troisième type d'échantillons, décrit dans cette section, consiste en des boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs dont la croissance est réalisée sur le même type de substrats en V que ceux utilisés pour la croissance des boîtes quantiques des échantillons A. Ce nouveau type d'échantillons présente, à priori, trois avantages. Premièrement, la forme du substrat permet la fabrication de guides d'onde unidimensionnels. Deuxièmement, nous montrerons que la faible densité de boîtes quantiques est compatible avec la réalisation d'expériences de micro-luminescence sur boîte unique. Et, troisièmement, nous espérons tirer parti d'un effet de couplage d'ondes évanescentes à l'interface guide/air [87] pour augmenter l'efficacité d'extraction de la luminescence par rapport aux deux types

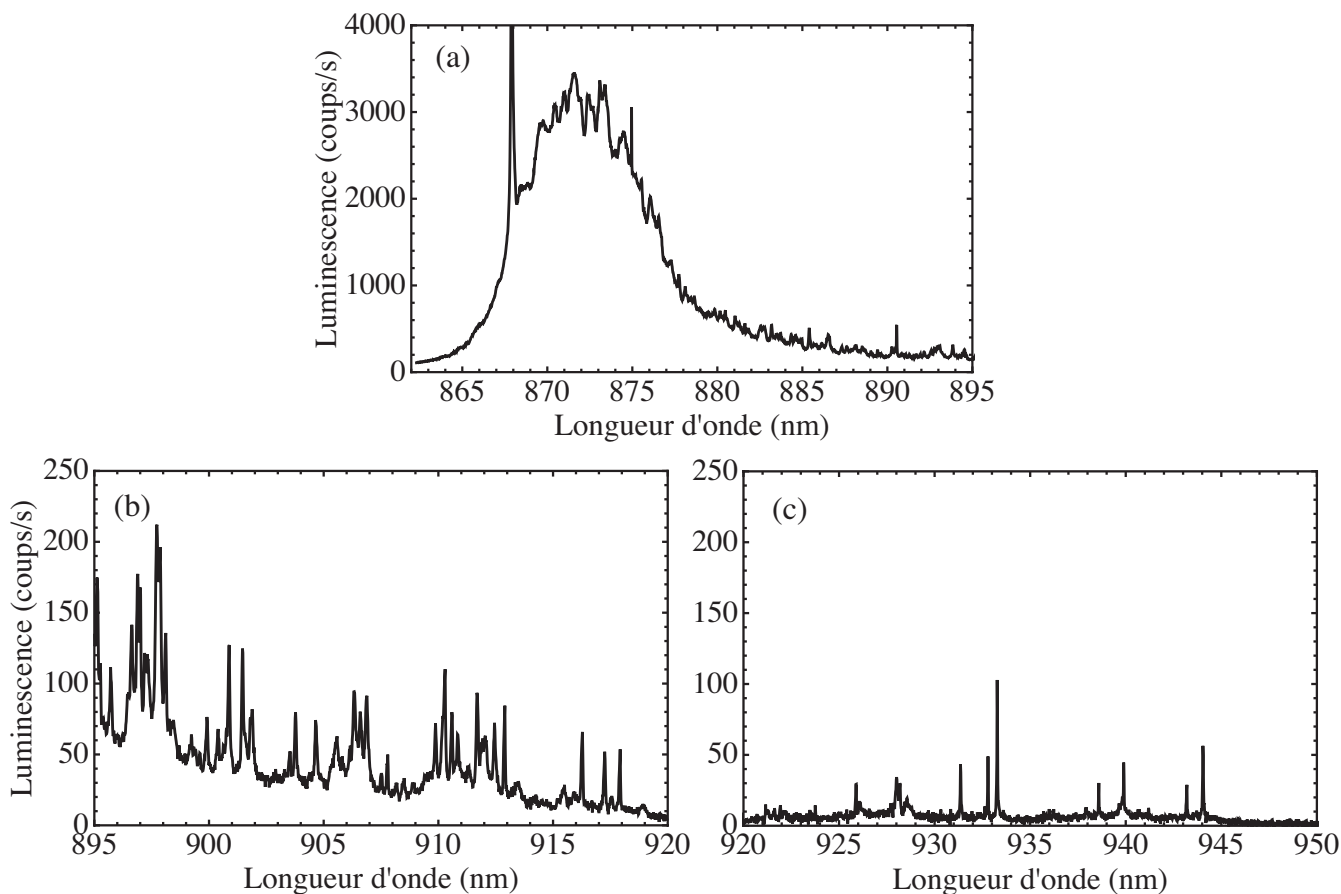


FIGURE 2.15 : (a) Spectre de micro-photoluminescence de la couche de mouillage d' InAs excitée par un laser à plus haute énergie. (b) Spectre de boîtes quantiques proches en énergie de la couche de mouillage. (c) Spectre de boîtes quantiques plus éloignées en énergie de la couche de mouillage.

d'échantillons décrits précédemment. Sa structure est identique à celle des échantillons de type A avant l'élimination des puits quantiques [001] par gravure chimique. Une couche d' InAs , à partir de laquelle les boîtes quantiques se forment au dessus d'une couche de mouillage selon le mode de croissance Stranski-Krastanov décrit dans la section 2.3.1, est insérée dans une couche de GaAs .

La figure (2.16) représente un schéma de la structure de l'échantillon et une image, obtenue par microscopie électronique en transmission, de la coupe transversale de l'échantillon. Sur cette image, nous observons que l'épaisseur totale des deux couches de $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ entre lesquelles se situent la couche de mouillage et les boîtes quantiques est typiquement de $0.6 \mu\text{m}$, l'épaisseur de chacune des deux couches de $\text{Al}_{0.60}\text{GaAs}$ est de $0.7 \mu\text{m}$ et la largeur de la surface plane [001] est de $0.5 \mu\text{m}$.

Nous pouvons voir, sur les deux images de microscopie électronique présentées sur la figure (2.17), les boîtes quantiques qui se sont formées avant d'être encapsulées par une

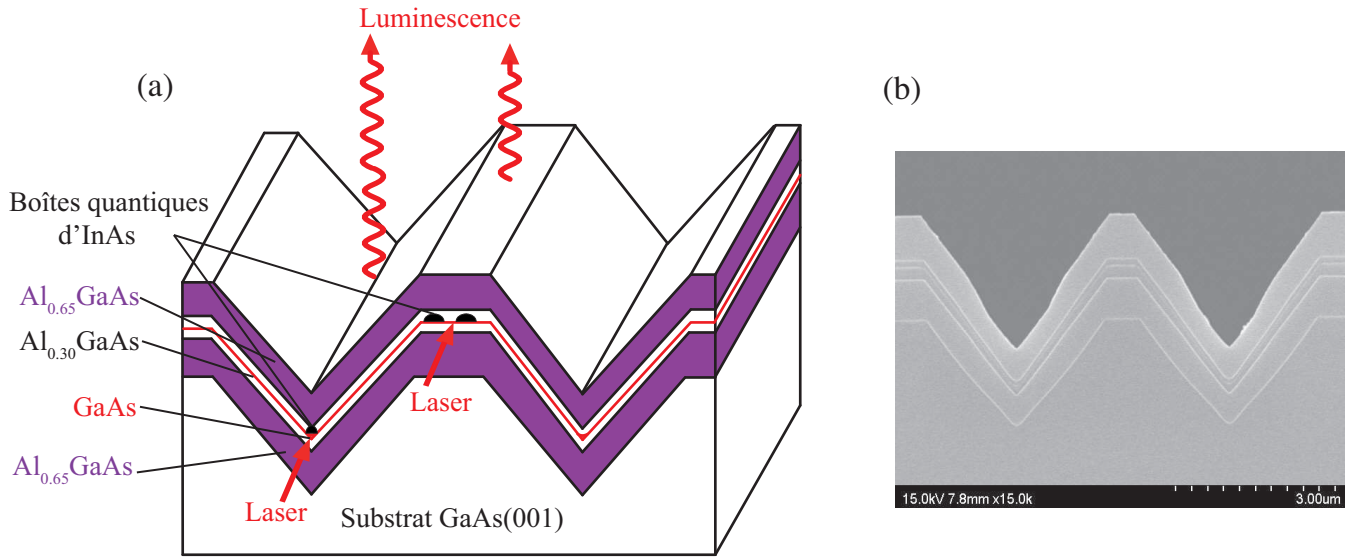


FIGURE 2.16 : (a) Schéma de la structure contenant les boîtes quantiques d'InAs. (b) Image obtenue par microscopie électronique en transmission de la coupe transversale de l'échantillon.

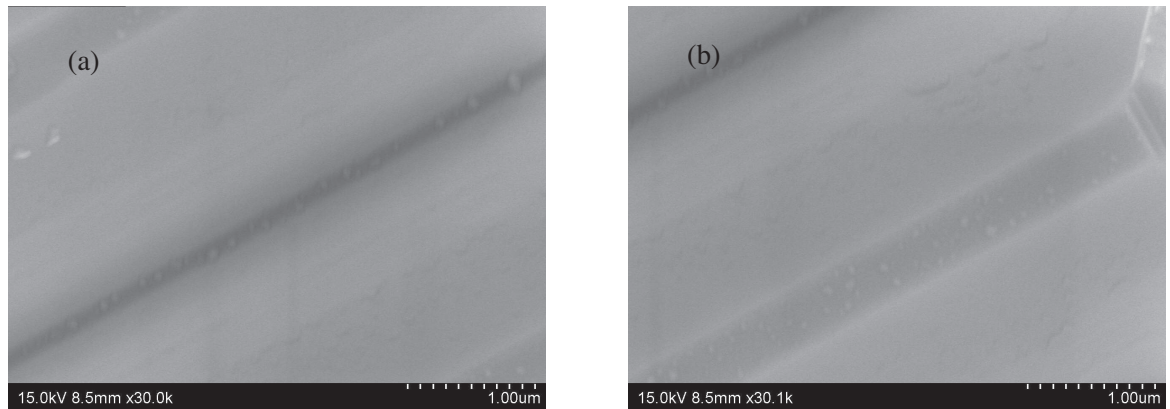


FIGURE 2.17 : Images *TEM* des boîtes quantiques d'InAs (a) formées le long de l'arête du V, (b) formées sur le plan [001].

fine couche de GaAs. Les deux régions de l'échantillon qui nous intéressent sont le fond des V (image (a)) et la surface plane [001] (image (b)). Dans le premier cas, les boîtes quantiques sont parfaitement alignées dans le fond du V. La densité de boîtes est alors très faible : entre 5 et 10 boîtes par micron. Sur les plans [001], la densité de boîtes est environ trois fois plus élevée, mais encore compatible avec des expériences sur boîte unique.

2.4.2 Propriétés optiques des guides d'onde

Cet échantillon contient deux types de guide d'onde : un guide au fond du V et un autre formé par les facettes cristallographiques [001]. Les modes propres de ces deux guides

d'onde sont représentés sur la figure (2.18). Le mode propre dans le V est identique à celui

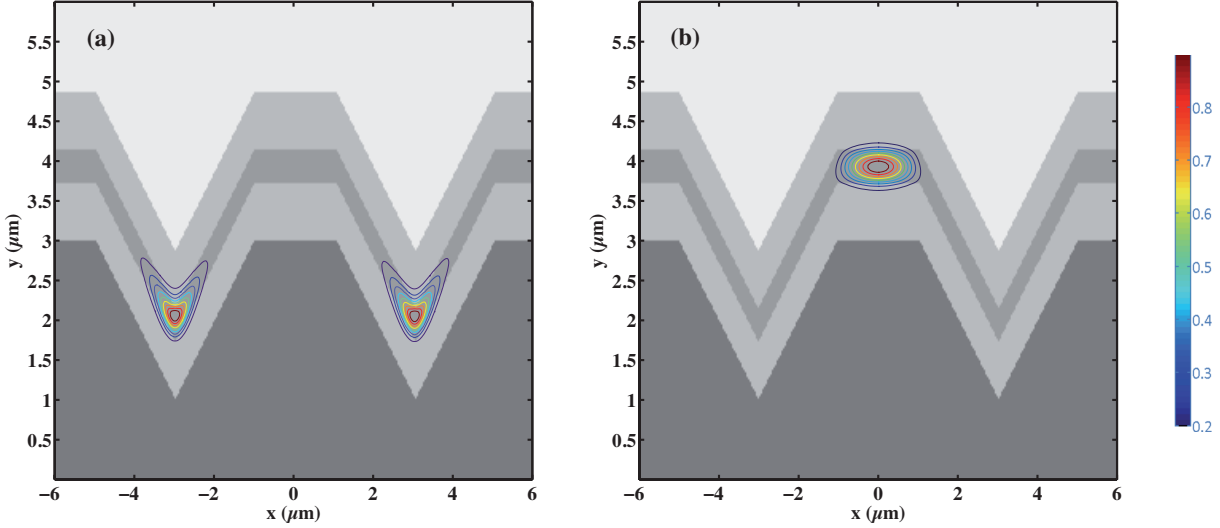


FIGURE 2.18 : Profil d'intensité du mode fondamental des guides d'onde formés (a) au fond du V et (b) par les facettes [001].

calculé dans les échantillons A (voir figure (2.5b)) et le mode propre du second ressemble fortement à celui d'un guide d'onde unidimensionnel de section rectangulaire. De plus, la polarisation du laser, orientée selon l'axe Y, n'est presque pas modifiée pendant la propagation de la lumière dans chacun de ces guides d'onde.

2.4.3 Extraction de la luminescence

Boîtes quantiques sur la facette [001]

Il a été prouvé expérimentalement [87] que l'efficacité d'extraction de la luminescence d'un puits quantique de GaAs épitaxié sur la facette cristallographique [001] de la structure schématisée sur la figure (2.16) était de l'ordre de 50%, valeur 20 fois plus grande que celle attendue pour un puits quantique identique épitaxié sur un substrat complètement plat.

La simulation *FDTD* de la figure (2.19), représentant l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle localisé au centre de la surface [001] dans la couche de $\text{Al}_{0.30}\text{GaAs}$ montre essentiellement deux choses. Premièrement, l'amplitude maximale du champ calculée dans l'air juste au-dessus de la surface de l'échantillon à la verticale du dipôle est trois fois plus grande que celle calculée sur la figure (2.14) dans le cas d'un substrat complètement plat. Deuxièmement, l'angle d'émission de la lumière est environ 30° dans le cas d'un substrat en V alors que dans le cas d'un substrat plat, il est plutôt de 150° . Par

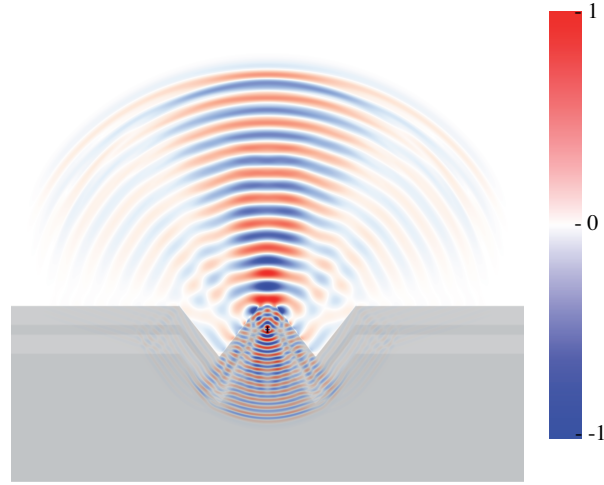


FIGURE 2.19 : Simulation *FDTD* de l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle unique inséré dans le guide d'onde (100).

conséquent, la luminescence émise dans le premier cas est entièrement collectée par l'objectif de collection d'ouverture numérique 0.5 alors que seulement 60% de la luminescence peut être collectée dans le second cas.

Ces deux propriétés (directionnalité de l'émission et grande efficacité d'extraction) sont attribuées au couplage entre les deux ondes électromagnétiques évanescentes localisées à l'interface AlGaAs/air des facettes [111], qui se transforment en une onde progressive se propageant dans la direction orthogonale à la surface horizontale [001].

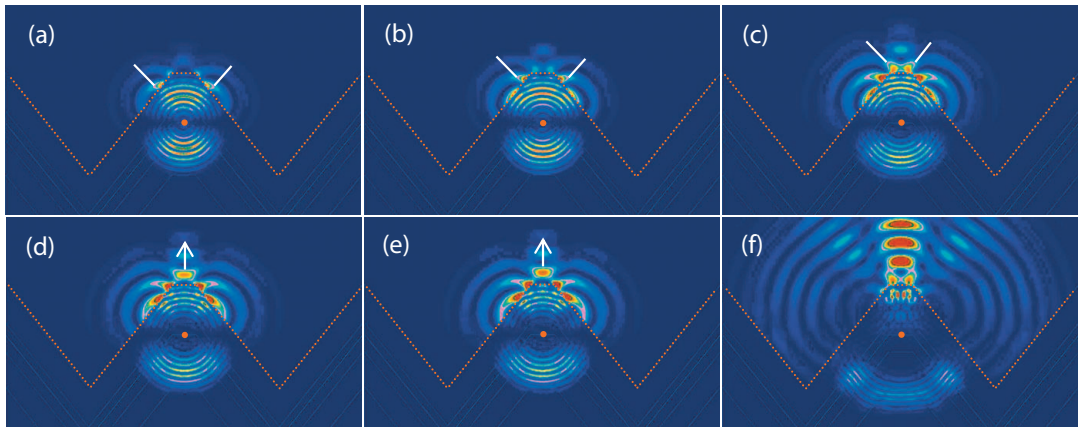


FIGURE 2.20 : Simulations *FDTD* de l'intensité lumineuse à des temps t de propagation différents. (a) $t=18$ fs, (b) $t=19$ fs, (c) $t=20$ fs, (d) $t=21$ fs, (e) $t=22$ fs, (f) $t=25$ fs. Figure tirée de [87].

Les simulations en temps réel, présentées sur la figure (2.20), montrent que l'onde sphérique émise par le dipôle donne naissance à deux ondes évanescentes là où l'onde

sphérique subit une réflexion totale interne (voir figures b et c). Cela se produit aux points où l'angle d'incidence de l'onde sphérique sur la facette [111] correspond à l'angle critique de réflexion totale interne calculé précédemment et valant 18° . Chacune de ces deux ondes se déplace uniquement le long de la surface des facettes [111] en direction du plateau horizontal [001] sans se propager directement dans l'air, dans la direction orthogonale aux facettes [111]. A cause de la largeur suffisamment petite de l'interface [001], de l'ordre de la longueur d'onde, $0.6 \mu\text{m}$, les deux ondes évanescentes peuvent se coupler lorsqu'elles arrivent ensemble sur l'interface [001] et se transforment en une onde progressive (voir figures d, e et f). Ce phénomène de couplage de deux ondes évanescentes permet d'extraire par la surface de l'échantillon une grande partie de l'énergie électromagnétique qui, en l'absence d'un tel couplage, aurait été réfléchi à l'intérieur de l'échantillon.

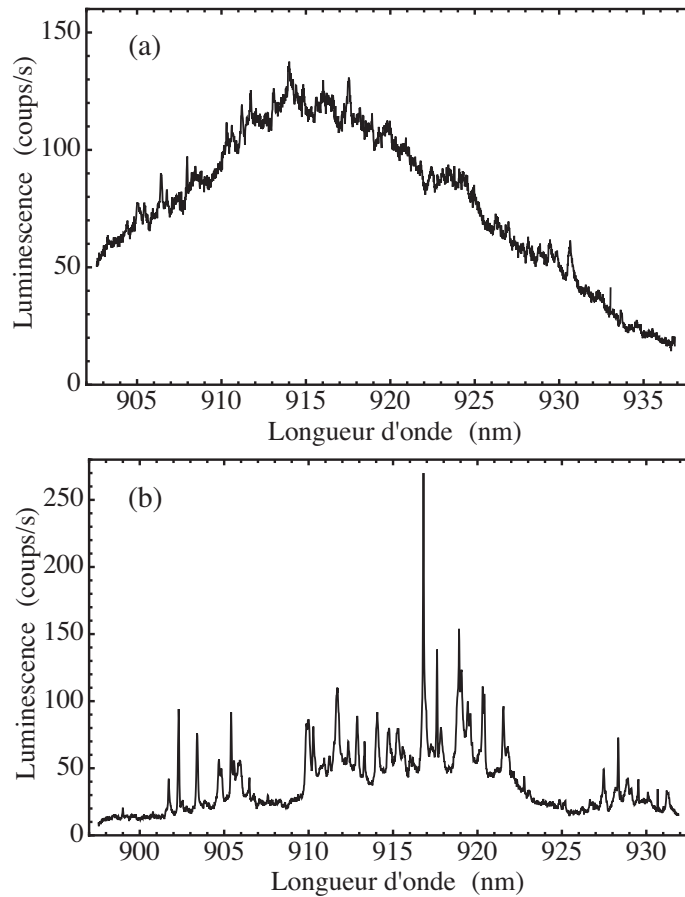


FIGURE 2.21 : Spectres de luminescence obtenus avec une puissance d'excitation (a) de 4 mW, (b) de $80 \mu\text{W}$.

Les spectres de micro-luminescence réalisés récemment (figure (2.21)) montrent clairement que le nombre de raies de luminescence, une trentaine, correspond bien au nombre de boîtes excitées, calculé à partir d'une densité de 15 à 30 boîtes par micron. La longueur d'onde moyenne d'émission des boîtes quantiques depuis l'état fondamental est de 915 nm

comme le montre la figure (a). Leur dispersion en énergie est moins grande que celle des boîtes épitaxiées par *MBE*, la largeur à mi-hauteur de la raie inhomogène étant de 20 nm.

Néanmoins, l'intensité des pics de luminescence n'est pas multipliée d'un facteur 20 par rapport aux raies de luminescence obtenues à partir des échantillons B. Sur le spectre (b), montrant la luminescence des boîtes quantiques excitées par des impulsions résonnantes avec la couche de mouillage, la plupart des raies ont une intensité d'une centaine de coups par seconde, intensité du même ordre de grandeur que celle observée sur les échantillons de type B. Une seule raie atteint une intensité de 250 coups par seconde. Il est probable que l'effet observé sur un puits quantique de GaAs est plus difficile à observer sur des boîtes quantiques dont les positions sur le plan cristallographique [001] sont aléatoires. Le couplage des ondes évanescentes est en effet très dépendant de la position de l'émetteur qui doit être parfaitement centré sur ce plan pour obtenir des interférences constructives et une hausse notable de l'efficacité d'extraction.

Boîtes quantiques dans le V

Nous avons également tenté d'étudier la luminescence des boîtes quantiques situées sur l'arête du V en excitant le mode guidé au fond du V (figure (2.18b)). L'avantage de ces boîtes quantiques provient de leur densité trois fois plus faible que la densité de boîtes sur les plateaux [001]. Par contre, un gros inconvénient est la faible efficacité d'extraction de la luminescence : non seulement l'effet de couplage des ondes évanescentes n'existe pas dans cette géométrie mais l'interface en forme de V réfléchit quasiment toute la luminescence qui arrive sur les flancs [111] du V.

La simulation montrée sur la figure (2.22) indique que, comme dans le cas des échantillons B, la luminescence est guidée par la couche [111] de GaAlAs et sort par la surface latérale. La luminescence est extraite principalement dans les deux cônes dont les axes de révolution sont à 35.3° de la direction verticale, la valeur de cet angle étant celle du demi-angle du V. L'objectif de microscope de collection de la luminescence ne peut donc récolter qu'environ 50% de la lumière extraite.

Expérimentalement, nous n'avons pas observé de luminescence provenant de ces boîtes quantiques. Le spectre (2.23) montre l'émission peu intense de la couche de mouillage alors que l'excitation dans les barrières de AlGaAs est forte : 4 mW. Dans la région spectrale au-delà de 900 nm, aucune raie de luminescence des boîtes quantiques ne peut être observée. L'absence totale de luminescence des boîtes quantiques ne peut pas être entièrement imputée à la faible efficacité d'extraction. Deux hypothèses sont envisageables : soit il n'y a pas de boîtes quantiques au fond du V dans cet échantillon, soit le canal de relaxation radiatif de ces boîtes quantiques est inefficace, ce qui pourrait être dû aux contraintes trop fortes subies par les boîtes coincées entre les deux flancs du V.

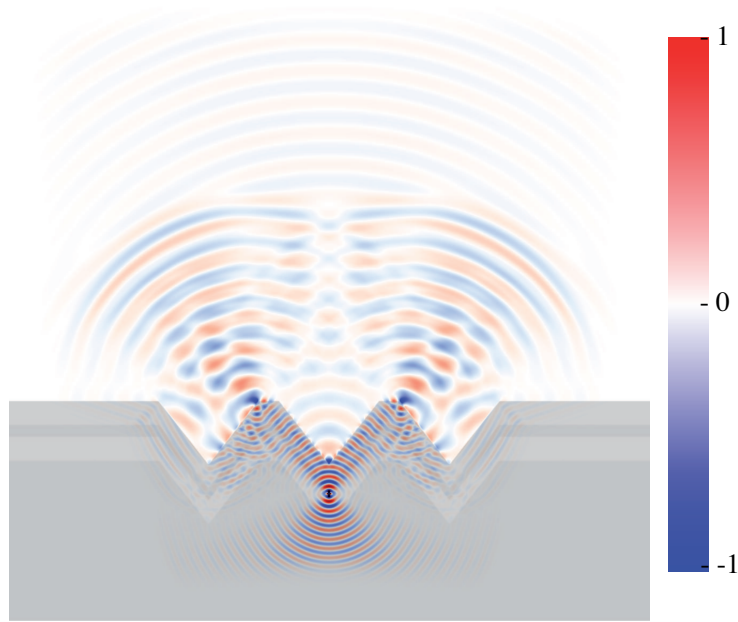


FIGURE 2.22 : Simulation FDTD de l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle unique inséré au fond du V.

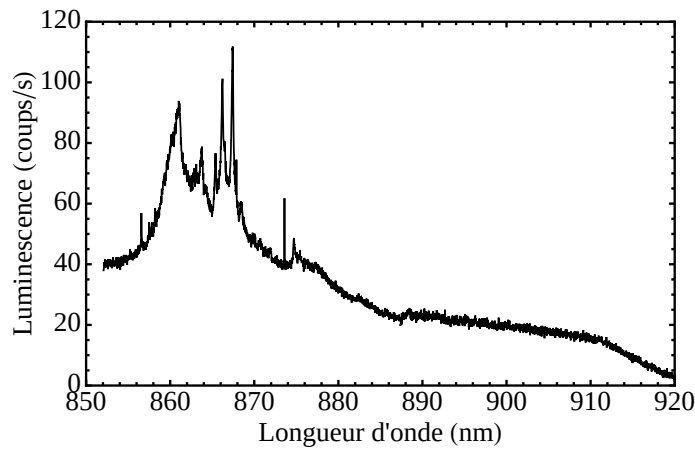


FIGURE 2.23 : Spectre de micro-photoluminescence obtenu à forte puissance d'excitation (4 mW).

L'apport essentiel des guides d'onde est de permettre la séparation des chemins d'excitation et de détection. Cette condition est indispensable pour réaliser des expériences de micro-luminescence où l'excitation est strictement résonnante avec la transition fondamentale des boîtes quantiques.

Les spectres de micro-photoluminescence, montrant l'émission de la transition fondamentale excitée à la résonance, sont présentés dans les quatrième et cinquième chapitre. Au cours de ces derniers, nous montrerons que la lumière diffusée de l'excitation laser par

la rugosité des interfaces formant les guides d'onde ne permet pas d'observer la luminescence de boîtes quantiques individuelles au dessus d'une certaine puissance d'excitation. En effet, le rapport entre l'intensité de la luminescence et le fond et l'intensité du laser diffusé orthogonalement à la surface de l'échantillon devient négligeable. C'est pourquoi nous continuons actuellement l'étude des échantillons C qui constituent une voie prometteuse en ce qui concerne l'efficacité d'extraction de la luminescence.

Chapitre 3

Montage expérimental

Sommaire

3.1	Schéma général du montage	66
3.2	Cryogénie	67
3.3	Source laser	70
3.4	Microscopie	74
3.4.1	Élargisseur de faisceau	74
3.4.2	Imagerie de la surface de l'échantillon	76
3.5	Sélection spatiale de la luminescence	77
3.6	Spectroscopie et détection	78
3.6.1	Spectromètre et caméra <i>CCD</i>	79
3.6.2	<i>Streak Camera</i>	80
3.7	Mesure de la cohérence quantique	82
3.7.1	Résolution du <i>splitting</i> d'échange avec l'interféromètre de Fabry-Pérot	83
3.7.2	Interféromètre de Michelson pour le contrôle cohérent	91

3.1 Schéma général du montage

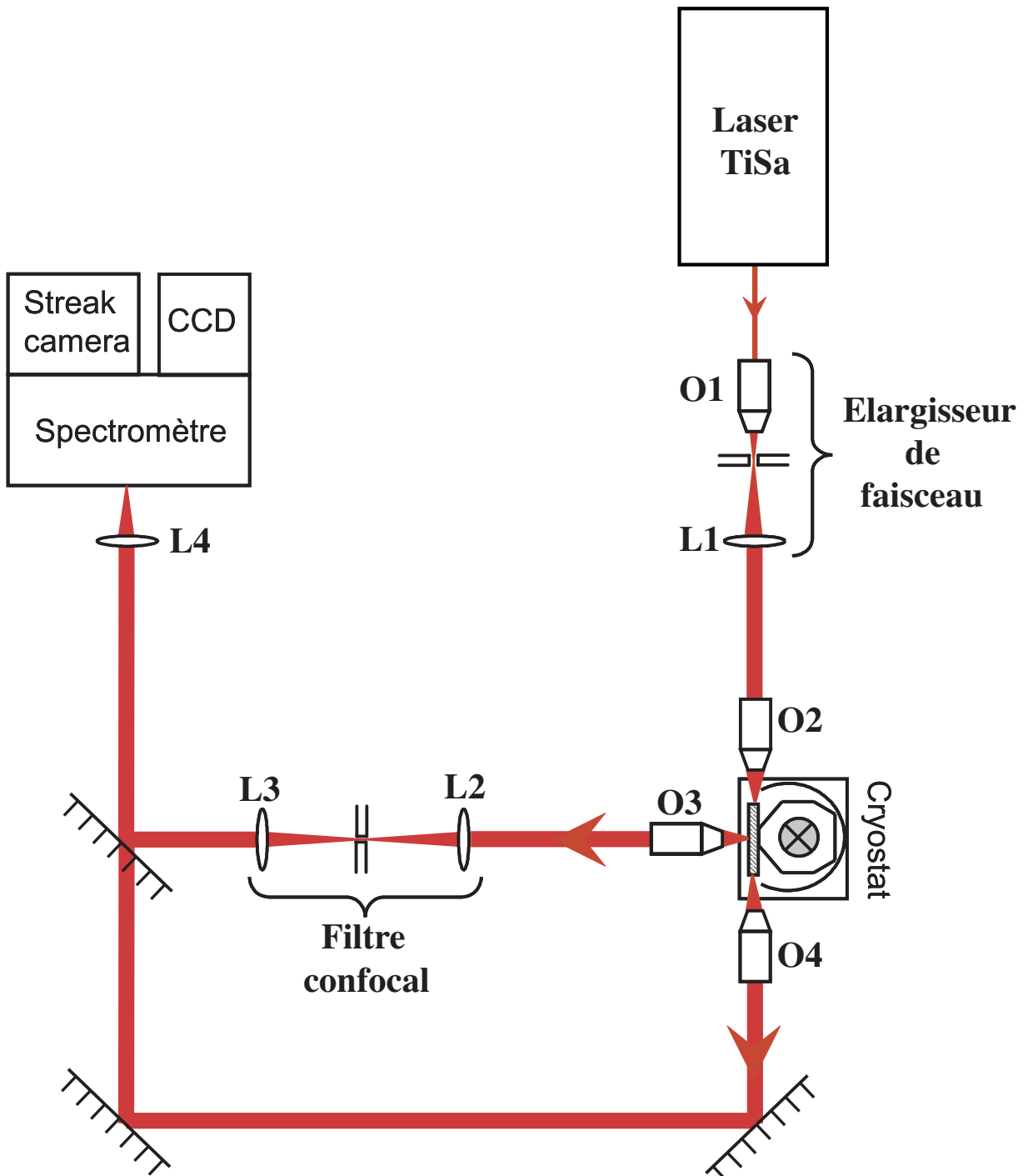


FIGURE 3.1 : Schéma du montage expérimental.

Le montage expérimental doit permettre d'observer et de résoudre la luminescence émise par les boîtes quantiques insérées dans les guides d'onde décrits dans le deuxième

chapitre. Une expérience de micro-photoluminescence en configuration guidée est une expérience de luminescence avec une grande résolution spatiale, dans laquelle l'excitation lumineuse, focalisée par un objectif de microscope à l'entrée du guide d'onde, se propage dans celui-ci et excite les boîtes quantiques qui sont à l'intérieur. La lumière émise par les boîtes est collectée par un autre objectif placé devant la surface de l'échantillon, perpendiculairement au guide d'onde. Notre expérience de micro-photoluminescence repose sur l'utilisation d'un système confocal permettant d'isoler la luminescence provenant d'un petit nombre de boîtes quantiques. La luminescence peut ensuite être analysée spectralement et temporellement par des appareils dont le fonctionnement sera détaillé au cours de ce chapitre.

L'ensemble du dispositif, représenté sur la figure (3.1), contient quatre grandes parties. Premièrement, tout ce qui concerne l'excitation : source laser impulsionnelle, élargisseur de faisceau et objectif de microscope permettant de coupler le mode laser au mode guidé. Deuxièmement, le cryostat, qui doit permettre l'accès à trois côtés de l'échantillon : les deux facettes clivées, correspondant aux entrées et sorties des guides d'onde, et la surface supérieure par laquelle la luminescence est collectée. Troisièmement, la détection, incluant le système confocal de sélection spatiale de la luminescence, la spectroscopie et le système de mesure de luminescence résolue en temps avec la *streak camera*. Enfin, les techniques de mesure de la cohérence via l'utilisation des interféromètres de Michelson et de Fabry-Pérot.

3.2 Cryogénie

Le cryostat est l'élément central du montage expérimental, toutes les expériences étant réalisées à basses températures. Il doit permettre à la lumière d'atteindre les deux facettes clivées des échantillons qui constituent l'entrée et la sortie des guides d'onde. De plus, la luminescence extraite des guides d'onde par l'interface gaine/air doit pouvoir être collectée par la surface de l'échantillon. Ces trois accès optiques, schématisés sur la figure (3.3), imposent de placer l'échantillon dans une cuve en verre. Pour satisfaire cette contrainte expérimentale, un cryostat à bain d'hélium est plus adapté qu'un cryostat à flux continu d'hélium.

Comme le montre le schéma de principe (3.2), le cryostat que nous utilisons est constitué, en partant du centre, d'un vase à hélium liquide dont la température est 4.2 K. Un vase à azote liquide à la température de 77 K entoure le vase à hélium central, ces deux vases étant isolés thermiquement par une chambre à vide secondaire qui isole également le vase à azote de l'enceinte extérieure à température ambiante. Afin que l'échantillon soit placé dans une cuve en verre, le porte-échantillon est vissé directement sur le fond d'un

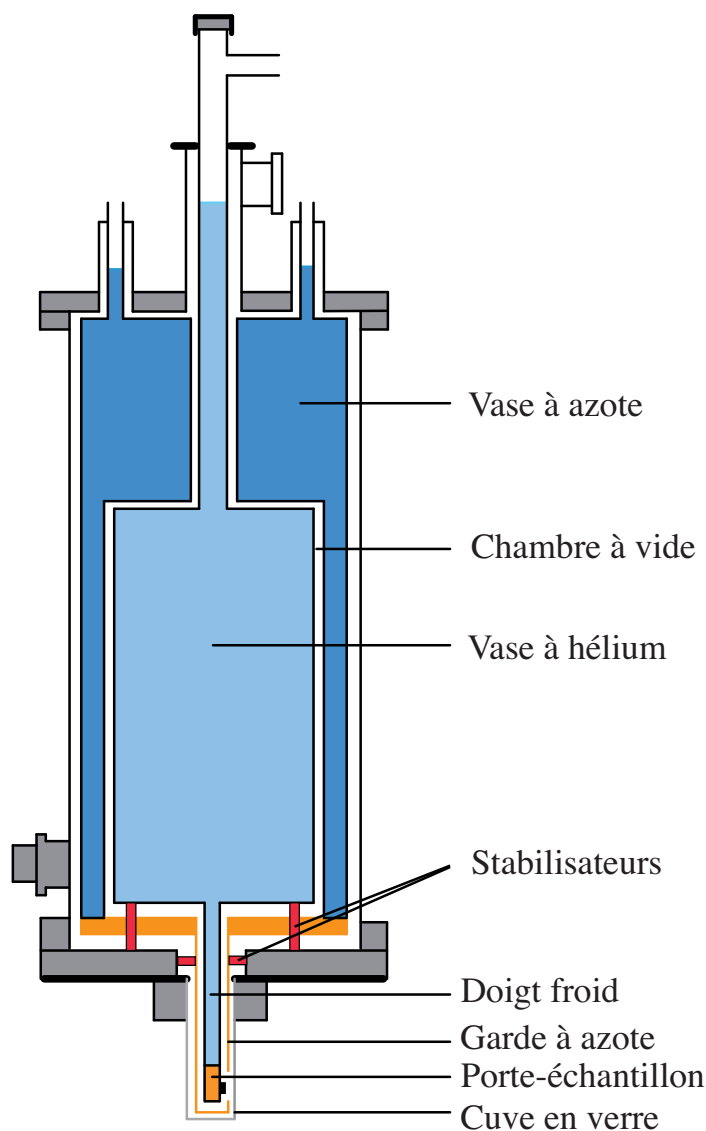


FIGURE 3.2 : Schéma de principe d'un cryostat à doigt froid.

doigt froid. Ce dernier, qui prolonge le vase à hélium dans sa partie inférieure et contient lui-même de l'hélium liquide, est de forme cylindrique de 10 cm de hauteur et 1 cm de diamètre. Le faible encombrement du doigt froid permet d'insérer son extrémité dans une cuve en verre parallélépipédique de 5 cm de hauteur et 1.6 cm de largeur.

Entre le doigt froid et la cuve en verre, une garde à azote en cuivre, prolongement du vase à azote, permet de protéger le doigt froid et une partie du porte-échantillon du rayonnement thermique provenant de l'extérieur. Ce dispositif maintient la température de l'échantillon la plus basse possible par simple contact thermique avec le doigt froid. La température du porte-échantillon la plus basse atteinte par ce système de refroidissement est de 8 K. Deux résistances Allen-Bradley fixées à l'intérieur du porte-échantillon

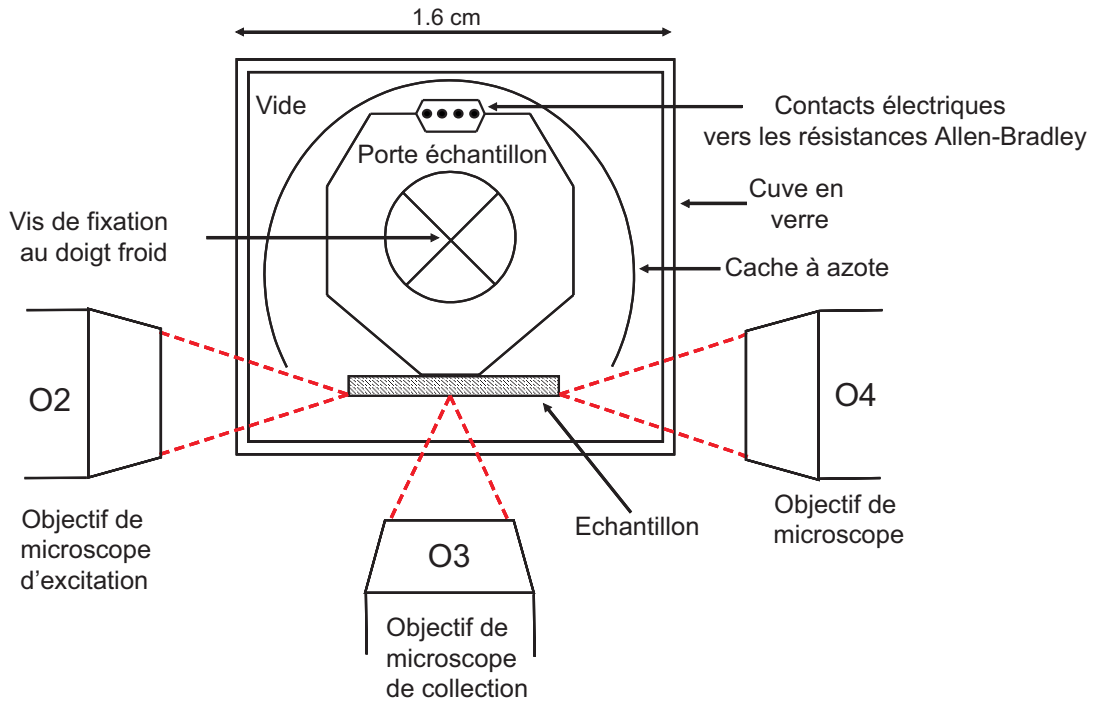


FIGURE 3.3 : Schéma du porte-échantillon faisant apparaître les trois accès optiques.

permettent d'augmenter et de contrôler sa température sur une gamme allant de 8 K à 80 K en présence d'hélium liquide et jusqu'à la température ambiante en présence uniquement d'azote. Une première résistance chauffe le porte-échantillon quand une tension de quelques volts est appliquée à ses bornes et une seconde permet de contrôler la température de l'échantillon via la mesure de sa résistance, calibrée en fonction de la température.

Un paramètre crucial pour un cryostat utilisé dans des expériences de micro-luminescence est sa stabilité. L'enregistrement de la luminescence provenant d'une boîte quantique unique peut nécessiter des temps d'acquisition de plusieurs dizaines de minutes. Ces contraintes expérimentales demandent d'assurer une stabilité de l'ordre de quelques centaines de nanomètres pendant des temps d'acquisition de typiquement 30 minutes. Le cryostat que nous utilisons a donc été conçu pour empêcher la dérive continue du positionnement vertical du porte-échantillon qui a pour origine la dilatation thermique de l'acier inoxydable constituant le vase à hélium. Au fur et à mesure que l'hélium s'évapore, le vase à hélium se dilate. Ce dernier étant fixé rigidement par le haut dans les cryostats à bain d'hélium classiques, la dilatation du vase se fait vers le bas entraînant avec lui le porte-échantillon positionné à l'extrémité du vase. Dans le cryostat utilisé, la dilatation se fait, au contraire, vers le haut du cryostat en laissant la position de l'échantillon inchangée. Le fond du vase à hélium repose sur trois piliers, dits stabilisateurs, fixés rigidement sur le fond de l'enceinte extérieure, ne subissant pas de dilatation thermique puisqu'elle

reste à température ambiante. De plus, trois vis latérales calent le doigt froid et le stabilisent latéralement. Ces stabilisateurs sont de faibles longueurs et se dilatent donc peu. Le matériau qui les constitue a été spécialement choisi afin de réduire au maximum le transfert de chaleur de l'extérieur vers le vase à hélium via ces stabilisateurs. Par ailleurs, afin de permettre la dilatation du vase vers le haut, une fixation souple le relie au col du cryostat autorisant un débattement vertical maximal de l'ordre du centimètre.

3.3 Source laser

Laser Titane-Saphir impulsif

L'étude de la dynamique d'un système quantique nécessite une excitation lumineuse impulsionnelle pour effectuer des expériences de contrôle cohérent permettant de mesurer des temps de vie et des temps de cohérence. Le laser utilisé est un laser Titane-Saphir (TiSa) à blocage de modes pouvant être monté en régime d'impulsions picosecondes ou femtosecondes, cadencé à 82 MHz. C'est un modèle Tsunami de Spectra-Physics, pompé par un laser solide $Nd : YVO_4$, lui-même doublé intra-cavité par un cristal de LBO qui produit un faisceau de longueur d'onde 532 nm et dont la puissance peut atteindre 10 W. Le jeu de miroirs choisi permet, grâce à un filtre de Lyot, d'accorder la longueur d'onde d'émission du laser Titane-Saphir entre 695 nm et 1000 nm, gamme de longueurs d'onde compatible avec l'excitation résonnante des boîtes quantiques de GaAs (autour de 750 nm) et d'InAs (autour de 930 nm). Pour ces deux longueurs d'onde d'émission, les puissances moyennes à la sortie du laser, pour une puissance de pompe de 9 W, sont de 2 W à 750 nm et 1.5 W à 930 nm. On notera que la polarisation de la lumière émise est linéaire, orientée selon un axe vertical.

Les caractéristiques temporelle et spectrale des impulsions picosecondes délivrées par le Titane-Saphir sont discutées dans le paragraphe suivant.

Largeurs temporelle et spectrale d'une impulsion

Pour remonter à la largeur temporelle des impulsions délivrées par le laser TiSa, on mesure la fonction d'autocorrélation d'ordre 2, S_2 , d'une impulsion. Par définition, nous avons :

$$S_2(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt I(t).I(t - \tau) \quad (3.1)$$

La figure (3.4) schématise le principe de fonctionnement d'un autocorrélateur en intensité, exploitant un effet non-linéaire de génération de seconde harmonique. L'impulsion

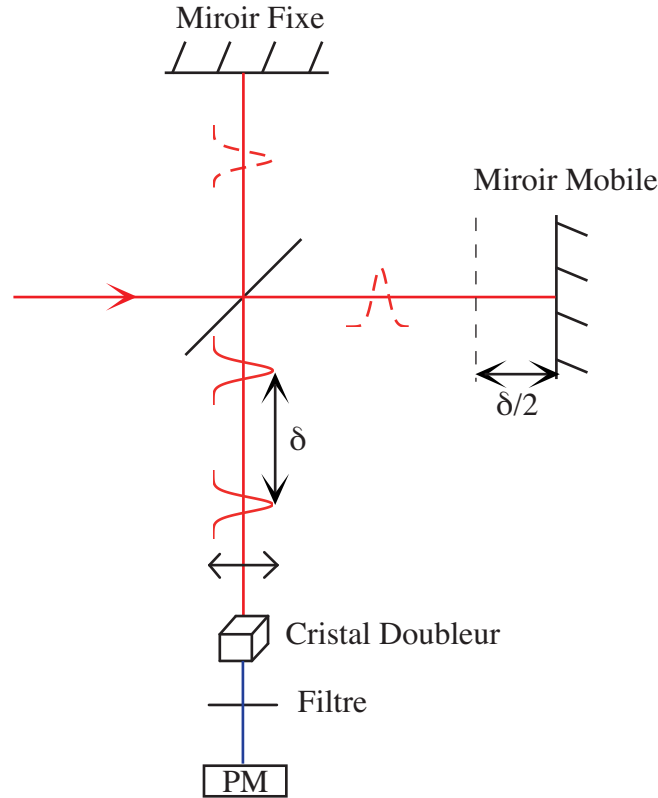


FIGURE 3.4 : Représentation schématique du fonctionnement d'un autocorrélateur en intensité.

entre dans un interféromètre de Michelson possédant un bras fixe et un bras mobile effectuant des allers-retours autour de la position de différence de marche nulle. En sortie de l'interféromètre, les deux impulsions provenant des deux bras sont donc séparées par un délai δ et traversent un cristal doubleur de fréquence. Le signal de sortie, à la fréquence double de la fréquence du signal d'entrée, est directement l'autocorrélation de l'impulsion d'entrée, qui est mesurée par un photomultiplicateur.

La figure (3.5) montre le résultat de l'autocorrélation d'une impulsion de longueur d'onde centrale 750 nm. Afin de remonter à la largeur temporelle à mi-hauteur de l'impulsion, nous devons connaître la forme de l'enveloppe de l'impulsion laser. En supposant que cette enveloppe s'écrit :

$$E(t) = \text{sech} \left(\frac{2.64 t}{\tau} \right) \quad (3.2)$$

où τ est la largeur totale à mi-hauteur, alors la largeur de la fonction d'autocorrélation en intensité est directement égale à la largeur de l'enveloppe du champ électrique τ . Pour cette longueur d'onde, nous trouvons une largeur de 1.2 ps pour l'enveloppe du champ électrique.

Par ailleurs, la figure (3.6) montre un spectre du laser Titane-Saphir en régime im-

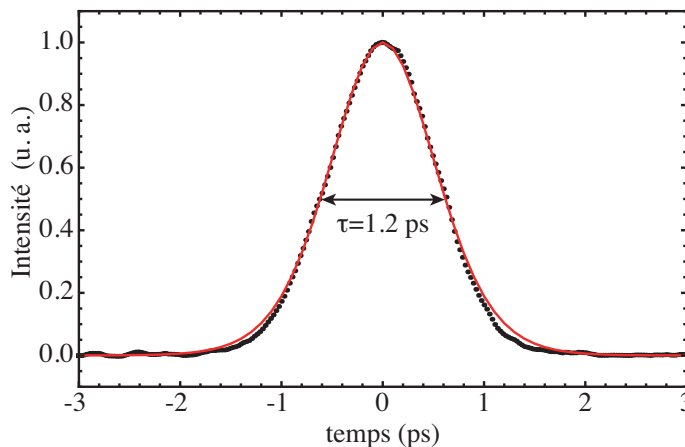


FIGURE 3.5 : Fonction d'autocorrélation d'ordre 2 d'une impulsion laser.

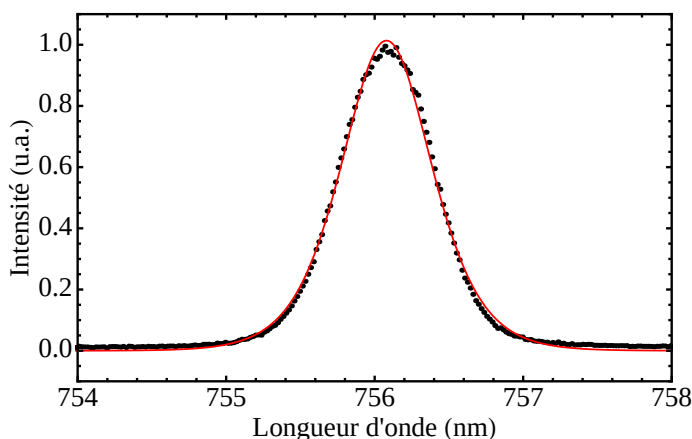


FIGURE 3.6 : Spectre d'une impulsion de largeur temporelle 1 ps mesurée avec un auto-corrélateur. L'ajustement par une fonction sécante hyperbolique carrée (courbe rouge) donne une largeur à mi-hauteur de 0.72 nm.

pulsionnel, dans lequel les modes longitudinaux de la cavité sont verrouillés en phase. La largeur spectrale des impulsions est mesurée en supposant une forme sécante hyperbolique carrée, sech^2 , pour la densité spectrale. Cette forme est cohérente avec le choix d'une enveloppe temporelle de forme sécante hyperbolique pour le champ électrique de l'impulsion, la transformée de Fourier d'une fonction sécante hyperbolique de largeur τ étant une fonction sécante hyperbolique de largeur $\Delta\omega = 4.4/\tau$. L'ajustement numérique donne une largeur pour l'intensité de $\Delta\lambda = 0.72$ nm, ce qui correspond à une largeur de 1.07 nm = 5.6 rad/ps pour le champ électrique. L'inégalité de Fourier est donc presque saturée étant donné qu'on trouve théoriquement une largeur spectrale de 4.4 rad/ps pour une impulsion de durée 1 ps.

Nous terminons cette partie sur le laser par une justification du choix de travailler avec des impulsions picosecondes plutôt que femtosecondes.

Impulsions picosecondes vs. impulsions femtosecondes

Aussi bien les expériences de mesure de temps de vie utilisant la *streak camera* que les expériences de contrôle cohérent nécessitent l'utilisation d'excitation impulsionnelle. Dans le premier cas, l'impulsion doit être beaucoup plus courte que le temps de décroissance de la luminescence, soit le temps de vie T_1 . Dans le second, nous verrons dans le cinquième chapitre que les expériences de contrôle cohérent sont plus facilement interprétables lorsque le temps d'interaction de l'impulsion avec le système à deux niveaux est beaucoup plus petit que les constantes de temps caractéristiques du système, soient le temps de vie T_1 et le temps de cohérence T_2 . On en déduit que la borne supérieure pour la durée τ de l'impulsion doit être inférieure au temps le plus court entre T_1 et T_2 , soit :

$$\tau \ll \min(T_1, T_2) \quad (3.3)$$

Les temps de cohérence les plus petits mesurés sont de l'ordre de 30 ps. Des impulsions picosecondes, et a fortiori des impulsions femtosecondes, vérifient la condition (3.3).

La raison portant notre choix sur des impulsions picosecondes provient du fait que, à énergie par impulsion égale, des impulsions femtosecondes excitent un plus grand nombre de boîtes quantiques que des impulsions picosecondes. En effet, nous démontrerons, dans le cinquième chapitre, qu'une impulsion π de durée 1 ps excite toutes les boîtes dont les transitions se font à des énergies appartenant à une plage de 500 μeV alors qu'une impulsion de durée 100 fs excite les boîtes sur une plage de 5 meV. Nous insistons d'ores et déjà sur le fait que, en régime de couplage fort pour lequel la période de Rabi, T_R , est plus courte que le temps de cohérence de la transition, la largeur spectrale sur laquelle une boîte quantique peut absorber un photon désaccordé de l'énergie de la transition n'est pas l'inverse du temps de cohérence, T_2 , comme en régime de couplage faible pour lequel l'absorption est faible devant l'émission spontanée [89]. En couplage fort, cette largeur, γ_{fort} , augmente avec la puissance de l'excitation. Cela ne viole pas les inégalités de Heisenberg sur la conservation de l'énergie. En effet, un système à deux niveaux en couplage fort avec la lumière voit la population de son niveau excité subir des oscillations de Rabi en fonction du temps dont la pulsation, Ω_R , est proportionnelle à l'amplitude, E_0 , du champ électrique incident. Pour cette discussion, nous admettons l'existence des oscillations de Rabi que nous démontrons dans le quatrième chapitre. Le système à deux niveaux reste donc dans l'état excité en moyenne pendant une demi-période $T_R/2$ puis se désexcite. L'inégalité de Heisenberg en couplage fort nous dit que :

$$\frac{T_R}{2} \gamma_{fort} \approx 1 \quad (3.4)$$

Or,

$$\frac{T_R}{2} = \frac{\pi}{\Omega_R} \propto \frac{1}{E_0} \quad (3.5)$$

Si bien que la largeur γ_{fort} est bien proportionnelle à E_0 :

$$\gamma_{fort} \propto E_0 \quad (3.6)$$

En régime impulsionnel, nous donnons un calcul plus détaillé de cette largeur dans la section 5.7.2.b.

Notre objectif étant d'exciter à la résonance le moins de boîtes quantiques possibles, idéalement une seule, des impulsions picosecondes sont donc plus favorables.

Dans l'autre limite où le couplage est faible, le temps pendant lequel le système à deux niveaux reste dans le même état cohérent est son temps de cohérence, T_2 . Dans ce cas, il vient pour la largeur d'absorption γ_{faible} :

$$\gamma_{faible} = \frac{1}{T_2} \quad (3.7)$$

Dans la section suivante, nous montrons comment l'impulsion laser est couplée à l'échantillon.

3.4 Microscopie

3.4.1 Élargisseur de faisceau

Le faisceau laser n'est pas envoyé directement sur l'objectif (O2) couplant la lumière au guide d'onde. Un système optique, composé d'un objectif de microscope (O1), d'ouverture numérique NA_1 égale à 0.35 et de distance focale f_{O1} de 12 mm, qui focalise le faisceau laser sur un trou de filtrage calibré de 10 μm de diamètre, et d'une lentille (L1) de focale f_{L1} de 80 mm, placée exactement à 80 mm du trou de filtrage, permet d'obtenir un faisceau parallèle de plus grand diamètre et moins divergent que le faisceau délivré directement par le laser Titane-Saphir.

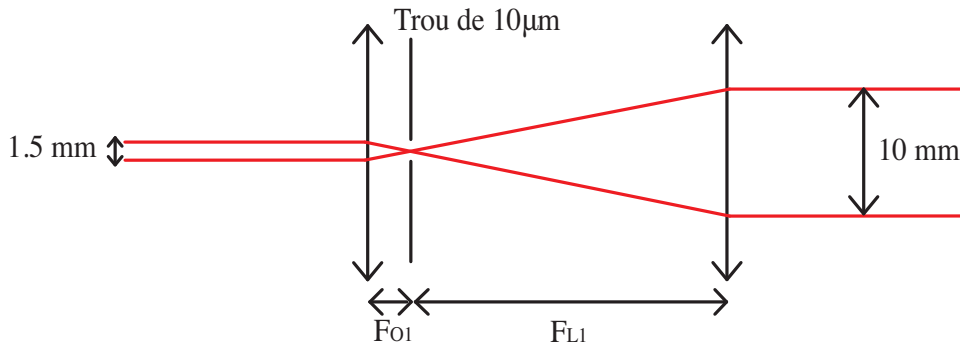


FIGURE 3.7 : Élargisseur de faisceau.

Comme le montre le schéma (3.7), le diamètre du faisceau sortant de ce système afocal est alors multiplié par 7, nombre correspondant au rapport des focales f_{L1} et f_{O1} , par rapport au diamètre du faisceau entrant. Le faisceau arrivant sur l'objectif (O2) possède alors un diamètre de 10 mm. Ce grand diamètre, par rapport à celui de la première lentille de l'objectif (O2) qui est de 3 mm, laisse la possibilité de translater l'objectif (O2) dans le plan perpendiculaire au faisceau. Ce mouvement de translation laisse la liberté à l'expérimentateur de coupler la lumière dans un grand nombre de guides d'onde, sans avoir besoin de modifier l'alignement du filtrage.

Le second rôle de l'élargisseur de faisceau est d'isoler le montage optique de la source laser. Le montage est ainsi rendu moins sensible à d'éventuelles variations spatiales du faisceau laser. Le trou de $10\text{ }\mu\text{m}$ peut, en effet, être considéré comme le point source du montage conjugué à l'entrée du guide d'onde par la lentille (L1) et l'objectif (O2).

Le meilleur couplage entre le mode gaussien du faisceau laser sortant de l'objectif (O2) et le mode guidé est obtenu lorsque le recouvrement spatial entre ces deux modes est total. Sur les profils d'intensité des modes guidés, représentés sur les figures (2.5b) et (2.11b), l'extension spatiale transversale des modes est de l'ordre du micron, si bien que nous cherchons à focaliser le faisceau d'excitation sur une largeur de $1\text{ }\mu\text{m}$.

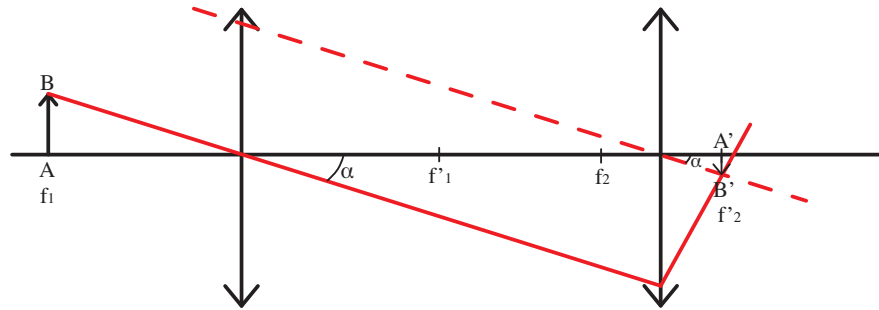


FIGURE 3.8 : Grandissement d'un doublet de lentilles (L1) et (L2) convergentes de focales f_1 et f_2 avec l'objet situé dans le plan focal objet de (L1).

En optique géométrique, le grandissement γ d'un doublet de lentilles convergentes calculé pour un objet situé dans le plan focal objet de la première lentille est donné par le rapport des focales suivant :

$$\gamma = \frac{f_2}{f_1} \quad (3.8)$$

En effet, avec les notations de la figure (3.8), l'égalité suivante est vérifiée :

$$\tan(\alpha) = \frac{AB}{f_1} = \frac{A'B'}{f_2} \quad (3.9)$$

La formule (3.8) découle directement de l'égalité (3.9). La première lentille est la lentille (L1) de focale 80 mm et la seconde, l'objectif (O2) de focale 5 mm, d'ouverture numérique

NA_2 de 0.45 et de distance frontale 17 mm, corrigé, comme les objectifs (O3) et (O4), pour obtenir une résolution optimale en présence d'une lame de verre d'épaisseur 1.8 mm entre l'objectif et l'objet. Dans le cas où l'objet est constitué par le trou de filtrage de $10\ \mu\text{m}$ de diamètre, la tache focalisée par l'objectif (O2) possède un diamètre de $0.6\ \mu\text{m}$ d'après la formule (3.8).

Cette valeur est en fait inférieure à la valeur minimale donnée par la diffraction de l'objectif. On peut montrer que pour une lentille de géométrie circulaire, la loi d'intensité suivie par la lumière au point focal est une fonction de Bessel du premier ordre donnant lieu à une figure de diffraction en anneaux concentriques. La taille du spot focalisé, assimilée au diamètre w du disque central, est donnée par la formule suivante :

$$w = 1.22 \frac{\lambda}{NA} \quad (3.10)$$

La véritable taille du spot est donnée par la plus grande des deux valeurs obtenues, soit par un calcul d'optique géométrique, soit par un calcul de diffraction. Dans notre cas, pour une longueur d'onde d'excitation de 750 nm, la taille du spot est limitée par la diffraction et son diamètre est donc égal à $2\ \mu\text{m}$.

3.4.2 Imagerie de la surface de l'échantillon

Nous exposons le montage d'imagerie permettant d'observer, soit les facettes clivées de l'échantillon, soit sa surface gravée. Ce montage est nécessaire, d'une part, pour faire coïncider le spot d'excitation avec l'entrée d'un guide sur la facette clivée et, d'autre part, pour sélectionner la zone d'observation des boîtes quantiques en translatant l'objectif (O3) de collection.

Le principe, schématisé sur la figure (3.9), est simplement d'éclairer avec une lampe blanche la surface ou la facette de l'échantillon à travers l'objectif de microscope. Le faisceau doit être divergent à l'entrée de l'objectif afin d'éclairer uniformément l'échantillon sur l'ensemble du champ vu par l'objectif. L'image de la surface, ou de la facette, est réfléchiée par l'échantillon et sort de l'objectif de microscope en faisceau parallèle, dont une partie est réfléchiée par une lame semi-réfléchissante et envoyée sur une caméra CCD de type webcam. Plusieurs images obtenues de cette manière ont permis de montrer la surface des échantillons (voir le deuxième chapitre). Cela permet aussi de se représenter le champ total vu par l'objectif (O3) de collection de la luminescence, typiquement un disque de $50\ \mu\text{m}$ de diamètre.

La micro-photoluminescence consistant à observer la luminescence émise par un objet de taille submicrométrique, la section suivante expose les techniques expérimentales permettant de sélectionner spatialement la luminescence de ces objets.

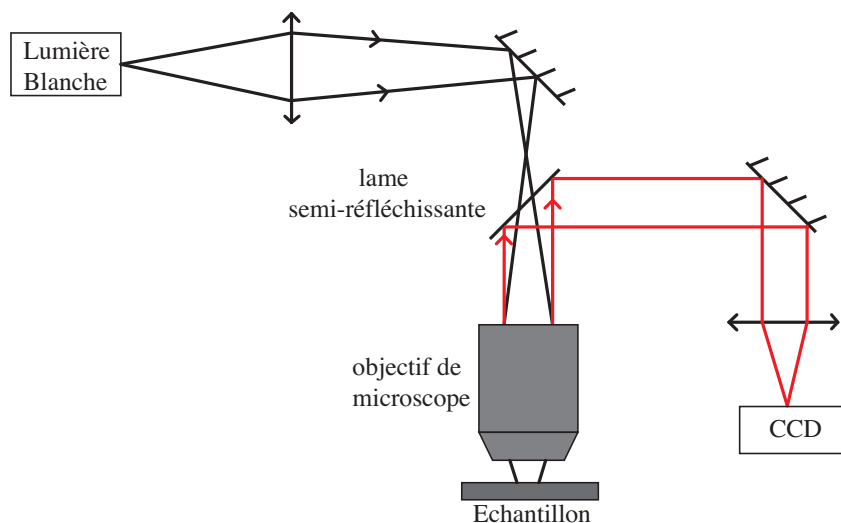


FIGURE 3.9 : Schéma du montage d'imagerie en lumière blanche de la surface d'un échantillon.

3.5 Sélection spatiale de la luminescence

La luminescence est collectée depuis la surface gravée de l'échantillon par un objectif de microscope (O3) d'ouverture numérique NA_3 de 0.6, de distance focale 4 mm et de distance frontale 7 mm.

Le champ total de cet objectif de collection, couvrant une zone de l'échantillon de $50\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre, est beaucoup trop grand pour permettre d'isoler un nombre suffisamment petit de boîtes quantiques pour résoudre les raies homogènes individuelles de la luminescence de ces boîtes. Cette configuration expérimentale ne permet d'obtenir que des spectres de macro-luminescence.

Afin de diminuer le champ de l'objectif (O3), pour sélectionner spatialement une quantité moins grande de boîtes quantiques, il existe deux méthodes. La première consiste à graver des masques à la surface de l'échantillon. Cela est réalisé par dépôt d'une fine couche d'aluminium de 100 nm d'épaisseur sur la surface de l'échantillon, des trous de quelques centaines de nanomètres de diamètre sont ensuite percés par gravure chimique.

Une variante de cette technique consiste à retirer, par attaque chimique, les boîtes quantiques partout sauf en dehors de certains îlots appelés mésas, également de tailles submicrométriques.

La seconde méthode, celle que nous utilisons, ne fait intervenir que des éléments optiques et ne nécessite pas de gravure chimique supplémentaire qui pourrait détériorer les guides d'onde et accroître la diffusion parasite vers l'extérieur du guide de la lumière guidée. Cette méthode consiste à faire une image intermédiaire agrandie du champ de l'objectif de collection (O3) et d'en sélectionner une partie avec un trou de diamètre calibré. Ce trou est ensuite imagé sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Le système confocal

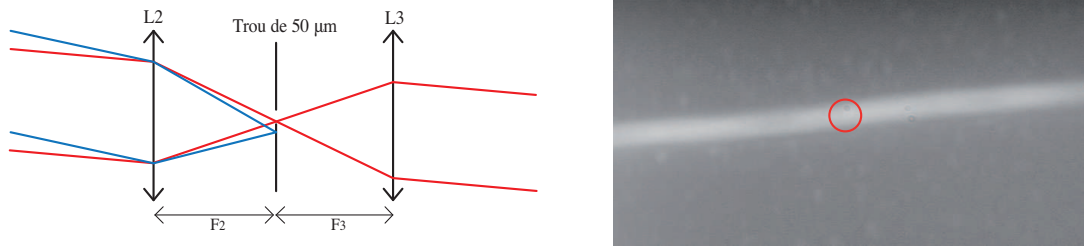


FIGURE 3.10 : (a) Système confocal sélectionnant les rayons les moins inclinés (rayons rouges) provenant d'un disque de $1 \mu\text{m}$ de diamètre sur la surface de l'échantillon. La zone de l'échantillon observée est la région entourée sur l'image (b).

utilisé pour sélectionner une petite zone du champ de l'objectif est schématisé sur la figure (3.10). Il est composé de deux lentilles identiques (L2) et (L3) de focales $f_{L2} = f_{L3}$ de 200 mm, placées à une distance $2f_{L2}$ l'une de l'autre et d'un trou de $50 \mu\text{m}$ de diamètre placé dans le plan focal image (objet) de la première (seconde) lentille. Le schéma du système confocal est montré sur la figure (3.10a). Le grandissement, γ_{conf} , du système optique composé de l'objectif (O3) et de la lentille (L2) avec l'objet placé dans le plan focal objet de l'objectif est donné, d'après la formule (3.8), par le rapport des distances focales suivant :

$$\gamma_{conf} = \frac{f_{L2}}{f_{O3}} = \frac{200}{4} = 50 \quad (3.11)$$

Si bien qu'un trou de $50 \mu\text{m}$ de diamètre intercepte une zone de l'image intermédiaire qui correspond à un disque de diamètre $1 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. La zone de l'échantillon sélectionnée par le trou est indiquée par un cercle sur l'image (3.10b). La lentille (L3) permet de collimater le faisceau de luminescence issu du trou du système confocal. Enfin, la lentille (L4) devant le spectromètre forme l'image du trou sur la fente d'entrée du spectromètre.

La luminescence sélectionnée par le filtre confocal est envoyée sur les appareils de détection permettant de mesurer l'intensité de la luminescence et sa décroissance temporelle.

3.6 Spectroscopie et détection

Nous présentons dans cette section les dispositifs de détection permettant d'analyser spectralement et temporellement la luminescence provenant de boîtes quantiques. Les analyses spectrales reposent sur l'utilisateur d'un spectromètre à réseaux et d'une caméra CCD et les expériences résolues en temps nécessitent l'utilisation d'une *streak camera*.

3.6.1 Spectromètre et caméra *CCD*

Après la sélection spatiale réalisée par le système confocal, la luminescence est focalisée sur la fente d'entrée d'un spectromètre avec la lentille (L4). Le spectromètre utilisé est un Triax 550 de chez Jobin & Yvon de distance focale 550 mm. La distance focale f_{L4} de la lentille (L4), égale à 80 mm, a été choisie en fonction de la taille des réseaux, la focale du spectromètre et du diamètre du faisceau de luminescence, de manière à couvrir la totalité du réseau afin d'optimiser la résolution spectrale du système de détection.

Les spectres ont été essentiellement obtenus avec un réseau de 1200 traits/mm, blasé dans le rouge. La luminescence diffractée est détectée, dans le plan focal image du spectromètre, par une caméra *CCD* en silicium de marque Jobin & Yvon, refroidie à l'azote liquide, de dimensions 1980×800 pixels mesurant chacun $12 \mu\text{m}$.

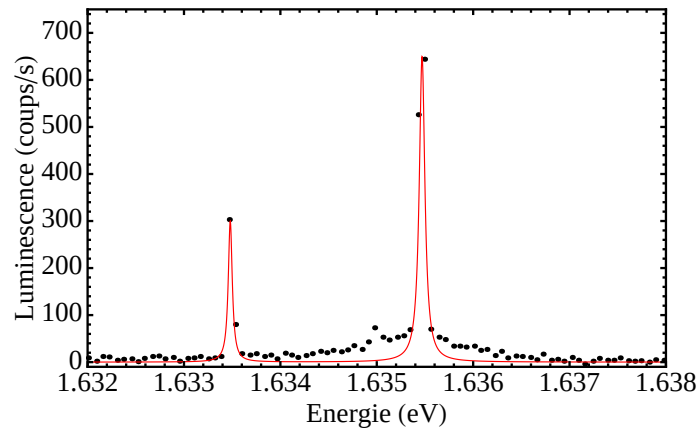


FIGURE 3.11 : Résolution spectrale du système de détection composé d'un réseau de 1200 traits/mm et d'une caméra *CCD*. L'ajustement numérique (traits pleins rouges) par des lorentziennes donne une largeur à mi-hauteur de $50 \mu\text{eV}$.

La résolution spectrale du système de détection, composé du réseau de 1200 traits/mm et de la caméra *CCD*, est de $50 \mu\text{eV}$. La figure (3.11) montre deux raies typiques de boîtes quantiques enregistrées avec ce système. La largeur des raies nous donne la résolution spectrale étant donné que le spectre des boîtes quantiques étudiées est plus fin que l'écart spectral entre deux pixels, qui est de $37 \mu\text{eV}$. L'ajustement lorentzien (courbes rouges) nous donne une largeur à mi-hauteur de $50 \mu\text{eV}$, valeur retenue pour la résolution spectrale.

Enfin, la réponse du système de détection, en particulier du réseau, dépend de la polarisation de la lumière. L'étude de l'intensité de la micro-luminescence en fonction de la polarisation nécessite de s'affranchir de cette dépendance sur toute la chaîne de détection depuis l'objectif de collection (O3) jusqu'à la caméra *CCD*. Dans ce but, un rotateur de polarisation et un polariseur sont placés juste derrière l'objectif (O3). Le polariseur, placé après le rotateur de polarisation, est orienté pour transmettre la lumière polarisée horizon-

talement, cette dernière étant détectée plus efficacement que la polarisation verticale par l'ensemble de la chaîne de détection. Le rotateur de polarisation permet de faire tourner globalement la polarisation de la lumière d'un angle contrôlable par l'expérimentateur. Le couple constitué par le rotateur et le polariseur permet donc l'acquisition de spectres en fonction de la polarisation de la luminescence en s'affranchissant de la réponse de la chaîne de détection.

3.6.2 *Streak Camera*

L'analyse temporelle de la luminescence est réalisée par une *streak camera* de marque Hamamatsu. Son principe général de fonctionnement est le suivant : les photons incidents sont convertis en électrons par une photocathode, puis ce faisceau d'électrons traverse une enceinte sous vide dans laquelle deux électrodes métalliques polarisées dévient le faisceau selon la direction verticale. La tension appliquée aux électrodes est une fonction sinusoïdale du temps dont la fréquence est synchronisée avec le taux de répétition, 82 MHz, du laser Titane-Saphir mesuré par une photodiode rapide. La plage temporelle maximale d'acquisition est de 2 ns correspondant à la partie linéaire de la tension sinusoïdale. Ensuite, le faisceau d'électrons dévié percute un écran phosphore provoquant l'émission de photons détectés par une caméra *CCD*. La déviation verticale des photons détectés est donc directement proportionnelle à leur instant d'arrivée sur la photocathode.

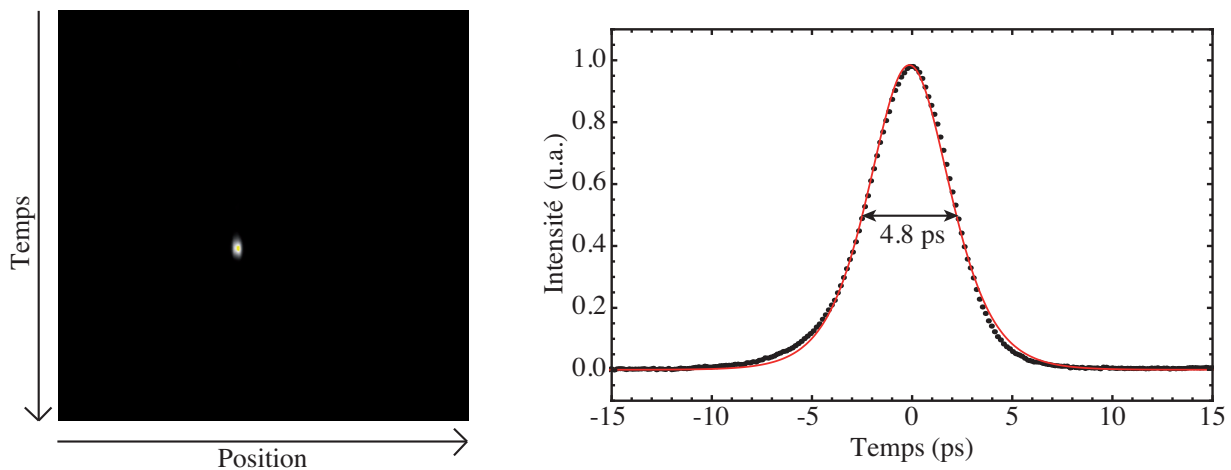


FIGURE 3.12 : Résolution temporelle intrinsèque de la *streak camera*. (a) Image fournie par la *streak camera* d'une impulsion de durée 1 ps. (b) Coupe temporelle de l'image (a) montrant un ajustement numérique (courbe rouge) qui donne une largeur à mi-hauteur de 4.8 ps.

La figure (3.12a) montre l'image fournie par la *streak camera* d'une impulsion laser dont le profil temporel d'intensité mesuré par l'autocorrélateur possède une largeur à mi-hauteur de 1 ps. L'échelle en abscisse représente la position horizontale de la lumière

incidente qui est proportionnelle à la longueur d'onde si la lumière est diffractée en amont par le réseau du spectromètre. Cette figure a été obtenue sans dispersion en longueur d'onde en utilisant la réflexion d'ordre 0 du réseau. La courbe (b), représentant une coupe temporelle de l'image (a), nous donne la résolution temporelle intrinsèque de la *streak camera*. L'ajustement par une fonction sécante hyperbolique carrée donne une largeur à mi-hauteur de 4.8 ps, supérieure à la véritable largeur de 1 ps. Nous en déduisons que la durée la plus petite mesurable par la *streak camera*, c'est-à-dire sa résolution temporelle, est de 5 ps.

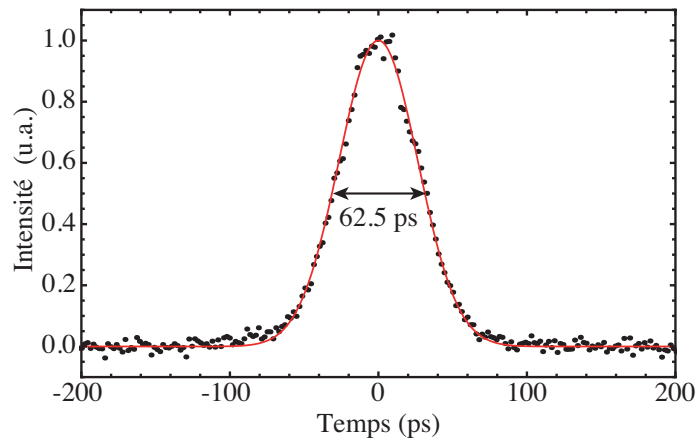


FIGURE 3.13 : Largeur temporelle d'une impulsion laser de 1 ps après diffraction par un réseau de 1200 traits/mm. L'ajustement numérique (courbe rouge) donne une largeur à mi-hauteur de 62.5 ps.

Par ailleurs, il peut être utile de disperser la luminescence en longueur d'onde, en particulier dans le cas des mesures de temps de vie sous excitation non résonnante pour lesquelles les luminescences provenant de plusieurs boîtes quantiques, émettant à des énergies différentes, ne peuvent être séparées qu'en dispersant la lumière par le réseau de 1200 traits/mm. Dans cette configuration, la résolution temporelle n'est pas donnée par la résolution intrinsèque de la *streak camera* de 5 ps mais par l'élargissement temporel induit par le réseau. En améliorant la résolution spectrale, le réseau dégrade la résolution temporelle du système de détection. Ainsi, la même impulsion laser de 1 ps que précédemment possède une largeur à mi-hauteur mesurée par la *streak camera* de 62 ps, comme le montre la figure (3.13). Dans les expériences qui nécessitent l'utilisation du réseau, il sera difficile de mesurer des temps plus courts que 60 ps. La connaissance de cet élargissement temporel nous permettra d'améliorer l'exploitation des mesures temporelles en déconvoluant les spectres résolus en temps par une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur de 60 ps.

La dernière section de ce chapitre est consacrée à la mesure du temps de cohérence d'un dipôle électrique. Deux techniques sont présentées reposant sur l'utilisation, pour

la première, d'un interféromètre de Fabry-Pérot permettant d'analyser spectralement la luminescence issue d'une boîte quantique unique, et, pour la seconde, d'un interféromètre de Michelson permettant de préparer l'excitation lumineuse.

3.7 Mesure de la cohérence quantique

Deux méthodes générales tirant parti de la luminescence permettent de mesurer le temps de cohérence d'un système quantique.

La première méthode consiste à mesurer le temps de cohérence des photons émis par le système étudié en remarquant que les propriétés de cohérence du dipôle émetteur sont intégralement transmises aux photons émis. L'idée est donc de mesurer la largeur spectrale de la raie d'émission de la luminescence. L'utilisation unique du spectromètre ne permet pas d'atteindre ce but dans le cas de largeurs de raies plus petites que sa résolution, soit environ $50 \mu\text{eV}$. Deux techniques permettent d'aller au-delà de la résolution du spectromètre : la spectroscopie par transformée de Fourier et le filtrage spectrale avec une cavité Fabry-Pérot. La spectroscopie par transformée de Fourier consiste à réaliser l'autocorrélation en amplitude de la luminescence avec un interféromètre de Michelson. Dans ce cas, l'information recherchée est contenue dans l'enveloppe des interférences obtenues en faisant varier la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre.

Nous avons préféré utiliser un interféromètre de Fabry-Pérot, en tant que filtre spectral accordable en fréquence. Dans ce cas, un balayage en fréquence permet de reconstituer point par point la raie de luminescence.

La seconde méthode générale consiste à sonder directement le dipôle et non pas les photons émis par le dipôle. Cette technique, appelée contrôle cohérent, présente l'avantage de manipuler directement le système à étudier et, comme nous le décrirons dans le cinquième chapitre, permet un plus grand nombre d'expériences. Dans cette technique, l'excitation doit être absolument résonnante avec la transition à manipuler. L'idée générale est d'exciter le système avec deux impulsions dont on contrôle très précisément le délai. Dans le cinquième chapitre, nous montrons comment la dépendance de l'intensité de la luminescence en fonction du délai permet de remonter au temps de cohérence de la source.

Nous allons détailler ces deux méthodes que nous avons utilisées. Le contrôle cohérent nous a permis de mesurer des temps de cohérence sous excitation résonnante qui sont présentés dans le cinquième chapitre. L'interféromètre de Fabry-Pérot, mis en place récemment, va nous permettre de résoudre le *splitting* d'échange, δ_1 , des boîtes quantiques et de connaître les directions des états propres X et Y. Les premiers résultats sont présentés dans le quatrième chapitre.

3.7.1 Résolution du *splitting* d'échange avec l'interféromètre de Fabry-Pérot

L'interféromètre de Fabry-Pérot, utilisé en tant que filtre interférentiel accordable en fréquence, est inséré sur le trajet de la luminescence devant le spectromètre. La bande passante du filtre étant beaucoup plus étroite que la résolution du spectromètre, c'est elle qui impose la résolution spectrale du dispositif de détection.

Nous commençons par rappeler la réponse de l'interféromètre lorsque le champ incident est constitué par une onde plane monochromatique. Ensuite, nous utiliserons ces résultats pour comprendre le rôle de l'interféromètre lorsque le champ incident est constitué par un train d'ondes dont la durée est fixée par le temps de cohérence T_2 de la source.

3.7.1.a Champ monochromatique

Soit une onde plane monochromatique incidente de pulsation ω et d'intensité I_e . On montre que le coefficient de transmission en énergie, T , défini par le rapport entre les intensités entrante $I_e(\omega) = |E_e(\omega)|^2$ et sortante $I_s(\omega) = |E_s(\omega)|^2$ du Fabry-Pérot, dépend de la pulsation de l'onde incidente de la manière suivante [90] :

$$\begin{aligned} T(\omega) &= \frac{I_s}{I_e} \\ &= \frac{(1 - R)^2}{(1 - R)^2 + 4R \sin^2 \left(\frac{\phi(\omega)}{2} \right)} \end{aligned} \quad (3.12)$$

où $\phi(\omega)$, le déphasage à l'entrée de l'interféromètre entre l'onde incidente et l'onde ayant parcouru un aller-retour dans l'interféromètre, vaut pour un angle d'incidence nul :

$$\phi(\omega) = \frac{2n\omega L}{c} \quad (3.13)$$

La figure (3.14) montre la fonction de transmission en énergie d'un interféromètre de Fabry-Pérot de longueur $L = 2$ cm, dont les deux miroirs possèdent des coefficients de réflexion en intensité $R = 0.99$ et constitué d'air entre les miroirs, l'indice de réfraction, n , valant alors 1.

La fonction (3.12) est une fonction périodique dont le motif est un pic très fin dont la largeur, γ , ne dépend que du coefficient de réflexion R et vaut dans le cas où $R = 0.99$, $0.6 \mu\text{eV}$. La période de cette fonction s'appelle intervalle spectral libre, abrégé en ISL. Exprimé en fréquence, l'ISL est donné par l'équation suivante :

$$ISL = \frac{c}{2L} \quad (3.14)$$

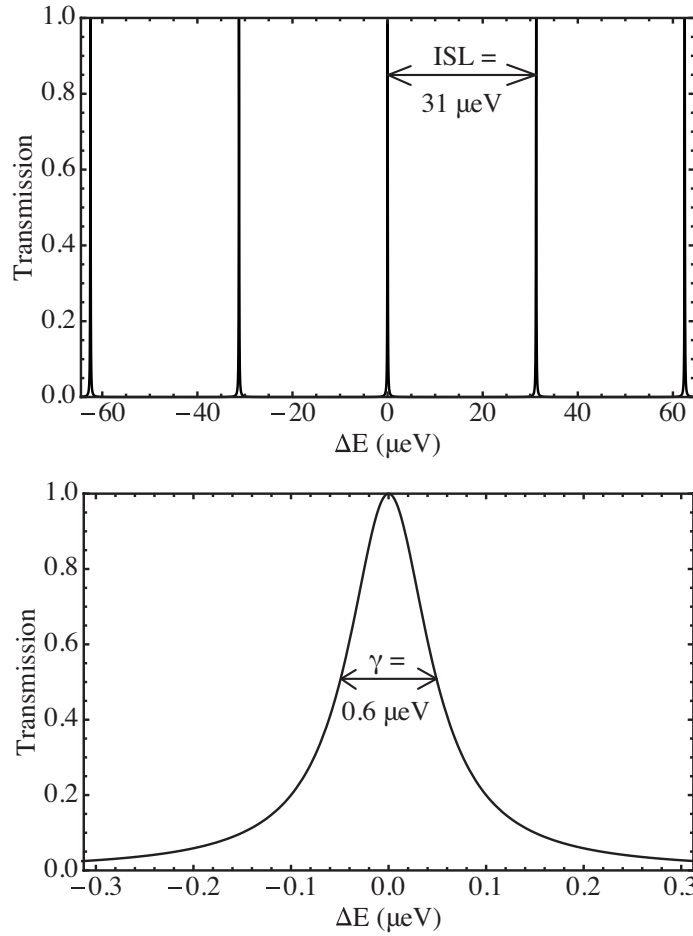


FIGURE 3.14 : (a) Coefficient de transmission en énergie d'un interféromètre de Fabry-Pérot de longueur $L = 2$ cm. Le coefficient de réflexion des miroirs est $R = 0.99$. L'ISL vaut $31.2 \mu\text{eV}$. (b) Zoom sur un raie de transmission.

Une cavité de longueur 2 cm correspond à un ISL de $31 \mu\text{eV}$. Cette valeur de l'ISL est bien adaptée à notre spectromètre étant donné qu'elle est presque égale à sa résolution spectrale. Pratiquement, les raies de luminescence dont la largeur spectrale est plus grande que l'ISL sont directement résolues par le spectromètre et les raies à la fois plus fine spectralement que l'ISL et plus large que γ sont résolues par Fabry-Pérot. Dans la pratique, un des deux miroirs de l'interféromètre est monté sur un déplacement piézoélectrique de façon à pouvoir modifier légèrement la taille de la cavité. Cela revient à modifier très légèrement l'ISL et permet un balayage en fréquence des pics de transmission du Fabry-Pérot. Par exemple, autour de 750 nm , un déplacement de $0.4 \mu\text{m}$ suffit pour déplacer d'un ISL les raies de transmission centrées autour de cette longueur d'onde. Expérimentalement, la fonction de transmission représentée sur la figure (3.14) s'obtient en utilisant un laser continu plus fin spectralement que les pics de transmission de l'interféromètre et en balayant le miroir mobile de l'interféromètre.

Dans la section suivante, nous abordons le problème de la transmission de l'interféromètre dans le cas d'une impulsion. Trois cas sont à étudier : temps de cohérence plus grand que $1/\gamma$, temps de cohérence plus petit que $1/ISL$ et le cas intermédiaire : temps de cohérence compris entre $1/ISL$ et $1/\gamma$. Nous montrerons que l'interféromètre n'est utile que dans ce dernier cas.

3.7.1.b Trains d'ondes

Grand temps de cohérence $\left(\frac{1}{T_2} < \gamma\right)$

Nous venons d'étudier le cas d'une onde plane monochromatique incidente. Cette onde plane correspond à la limite où le train d'ondes entrant dans l'interféromètre possède une extension spatiale et temporelle infinie. Dans ce dernier cas, l'interféromètre de Fabry-Pérot ne peut pas être utilisé pour mesurer la largeur spectrale de l'onde incidente. De façon plus générale, lorsqu'un train d'ondes est suffisamment long temporellement pour avoir un spectre plus fin que la largeur γ d'un pic de transmission du Fabry-Pérot, ce dernier ne permettra pas d'obtenir expérimentalement la largeur spectrale du train d'ondes.

Pour le comprendre, calculons l'intensité mesurée par le spectromètre. Les composantes de Fourier $E_S(\omega)$ du champ électromagnétique transmis sont reliés aux composantes de Fourier de mêmes pulsations du champ incident $E_I(\omega)$ par la relation suivante :

$$E_S(\omega) = t(\omega) E_I(\omega) \quad (3.15)$$

où $t(\omega)$ est la transmission complexe en amplitude. Donc, la densité spectrale $S_S(\omega)$ du champ transmis a pour expression, en fonction de la densité spectrale $S_I(\omega)$ du champ incident :

$$S_S(\omega) = T(\omega) |E_I(\omega)|^2 = T(\omega) S_I(\omega) \quad (3.16)$$

Or, par hypothèse, la largeur du spectre du train d'ondes incident est plus petite que la largeur γ , elle-même beaucoup plus petite que la résolution du spectromètre. Ainsi, à une position fixée du miroir mobile de l'interféromètre correspondant à une pulsation de résonance particulière ω_0 , le spectre affiché par la *CCD* n'est jamais résolu ; la raie est constituée typiquement de trois pixels. Dans ce cas précis, la hauteur du pic, $H(\omega_0)$ est proportionnelle à l'intégrale de la densité spectrale, non nulle sur un intervalle de pulsations plus petit que la résolution du spectromètre et centré en ω_0 . Il vient donc :

$$H(\omega_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} T(\omega - \omega_0) S_I(\omega) d\omega \quad (3.17)$$

On reconnaît dans l'équation (3.17) le produit de convolution suivant :

$$H(\omega_0) = T(\omega_0) \otimes S_I(\omega_0) \quad (3.18)$$

La formule (3.18), valable dans le cas où le spectre à mesurer est plus fin que l'ISL, nous indique qu'en balayant la pulsation de résonance, ω_0 , de la cavité Fabry-Pérot, on reconstruit point par point la fonction $H(\omega)$.

En théorie, la connaissance de la fonction de transmission $T(\omega)$ permet de remonter à la densité spectrale incidente, $S_I(\omega)$, par déconvolution. Or, en pratique, la fonction $H(\omega)$ possède quasiment la largeur de la fonction la plus large entre les fonctions $T(\omega)$ et $S_I(\omega)$. Si bien que, dans le cas où la largeur de $S_I(\omega)$ est plus petite que celle de $T(\omega)$, l'information concernant $S_I(\omega)$ contenue dans la fonction $H(\omega)$ est difficilement exploitable.

Afin que l'interféromètre puisse servir à mesurer des largeurs de raies, il faut donc que la fonction $S_I(\omega)$ à mesurer soit plus large qu'un pic de transmission, c'est-à-dire que l'inégalité suivante soit vérifiée :

$$\frac{1}{T_2} > \gamma \quad (3.19)$$

Nous verrons, qu'en pratique, la largeur γ des pics de transmission peut être considérée comme suffisamment petite devant la largeur des raies à mesurer pour les assimiler à des distributions de Dirac. Il s'en suit :

$$H(\omega_0) \propto E_I^2(\omega_0) \quad (3.20)$$

Dans le cas contraire, la formule (3.18) nous montre que l'on mesure la fonction de transmission en énergie $T(\omega)$ et non pas la densité spectrale du champ électromagnétique incident $|E_I|^2$. Numériquement, une largeur γ de $0.6 \mu\text{eV}$ ne permet pas de mesurer des temps de cohérence supérieur à 1000 ps.

Dans la section suivante nous étudions la limite contraire : un train d'ondes plus petit que la longueur de la cavité Fabry-Pérot, c'est-à-dire un train d'ondes dont le spectre est plus large que l'ISL.

Après cela, nous considérerons le cas d'un train d'ondes de durée moyenne, i.e. un train d'ondes dont le spectre est à la fois moins large que l'ISL et plus large que γ .

Temps de cohérence petit $\left(\frac{1}{T_2} > \gamma \right)$

Dans le cas où l'extension spatiale du train d'ondes est plus petite que la longueur L de la cavité, il vient :

$$c T_2 < L \quad (3.21)$$

Dans cette situation, deux parties différentes du même train d'ondes (le début et la fin) ne peuvent jamais interférer puisqu'elles ne peuvent jamais se recouvrir spatialement dans la cavité. Ainsi, le train d'ondes se réfléchit plusieurs fois dans la cavité et, à chaque

réflexion sur le miroir de sortie de l'interféromètre, correspond un train d'ondes transmis de même durée que celui incident et d'intensité décroissante lorsque le nombre de réflexions s'accroît.

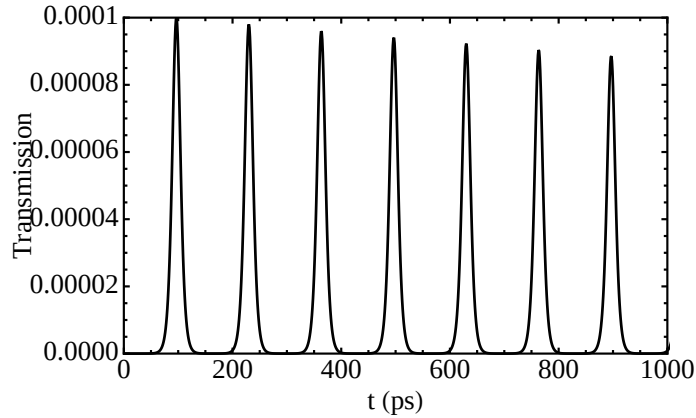


FIGURE 3.15 : Trains d'ondes successifs sortant de l'interféromètre de Fabry-Pérot lorsque le train d'ondes incident est plus court spatialement que la longueur de la cavité.

La figure (3.15) représente l'intensité lumineuse I_S à la sortie du Fabry-Pérot en fonction du temps sachant qu'une seule impulsion entre dans l'interféromètre au temps $t = 0$. Il sort une succession de trains d'ondes chacun de durée T_2 , espacés spatialement d'une distance de $2L$, correspondant à un aller-retour dans la cavité et d'intensité décroissante.

Chronologiquement, une impulsion d'intensité I_E arrive au niveau du miroir d'entrée du Fabry-Pérot au temps $t = 0$; 99% de l'intensité est réfléchie vers l'extérieur et donc une impulsion d'intensité $I_E/100$ pénètre dans le Fabry-Pérot. Après avoir parcouru la longueur L de la cavité, l'intensité maximale de l'impulsion transmise par le second miroir est encore divisée par un facteur 100, si bien que la première impulsion sortante possède une intensité maximale valant $I_E/10000$. Et ainsi de suite pour les impulsions sortantes qui suivent.

Dans cette situation, un balayage en fréquence de la cavité Fabry-Pérot ne permettra pas d'obtenir d'information quant à la durée des trains d'ondes. Pour le comprendre, raisonnons dans l'espace des fréquences. L'hypothèse (3.21) entraîne l'inégalité suivante :

$$\begin{aligned} \frac{1}{T_2} &> \frac{c}{L} \\ \frac{1}{T_2} &> 2 ISL \end{aligned} \quad (3.22)$$

L'inégalité (3.22) signifie que le spectre d'un tel train d'ondes se superpose donc à plusieurs pics de transmission successifs de l'interféromètre comme le montre la figure (3.16). Dans ce cas, un balayage en fréquence de la cavité ne modifie presque pas le spectre du champ transmis et donc l'intensité transmise reste quasiment constante quelle

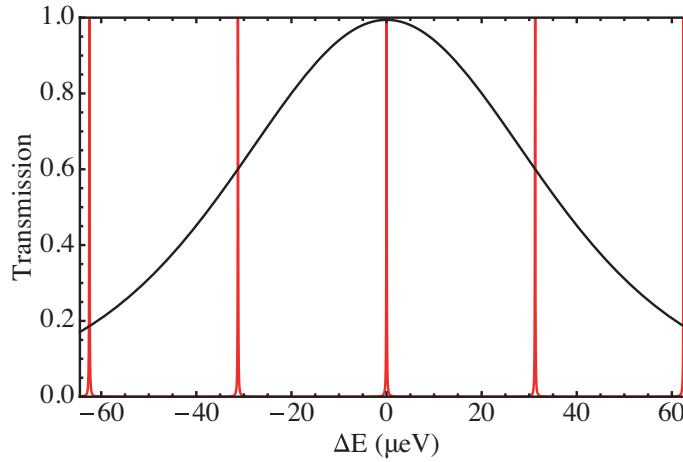


FIGURE 3.16 : Superposition des pics de transmission de l'interféromètre de Fabry-Pérot (trait plein rouge) et du spectre d'un train d'ondes gaussien plus large que $2 ISL$.

que soit la position du miroir mobile. Dans cette situation, l'interféromètre de Fabry-Pérot ne permet pas de mesurer la largeur spectrale de l'impulsion incidente. Cependant, l'ISL étant du même ordre de grandeur que la résolution du spectromètre, un spectre dont la largeur est supérieure à $2 ISL$ est directement résolu par le spectromètre.

L'étude des deux cas limites, train d'ondes infini et train d'ondes plus petit que la longueur L , nous fournit un encadrement des largeurs spectrales mesurables avec le système de détection interféromètre suivi d'un spectromètre. La largeur $1/T_2$ de la raie à mesurer doit être comprise entre la largeur γ d'un pic du Fabry-Pérot et la distance spectrale entre deux pics, l'ISL :

$$ISL > \frac{1}{T_2} > \gamma \quad (3.23)$$

Numériquement, cela donne :

$$30 \mu eV > \frac{1}{T_2} > 0.6 \mu eV \quad (3.24)$$

Ce qui équivaut temporellement à l'encadrement suivant :

$$1000 ps > T_2 > 20 ps \quad (3.25)$$

Temps de cohérence moyen $\left(ISL > \frac{1}{T_2} > \gamma \right)$

Nous définissons un train d'ondes long devant L par un train d'ondes vérifiant l'encadrement (3.25). Cette condition est illustrée par les figures (3.17). Ces dernières représentent simultanément, en traits pleins rouges, la fonction de transmission, $T(E)$, en énergie de l'interféromètre et, en traits pleins noirs, le spectre lorentzien d'un train d'ondes

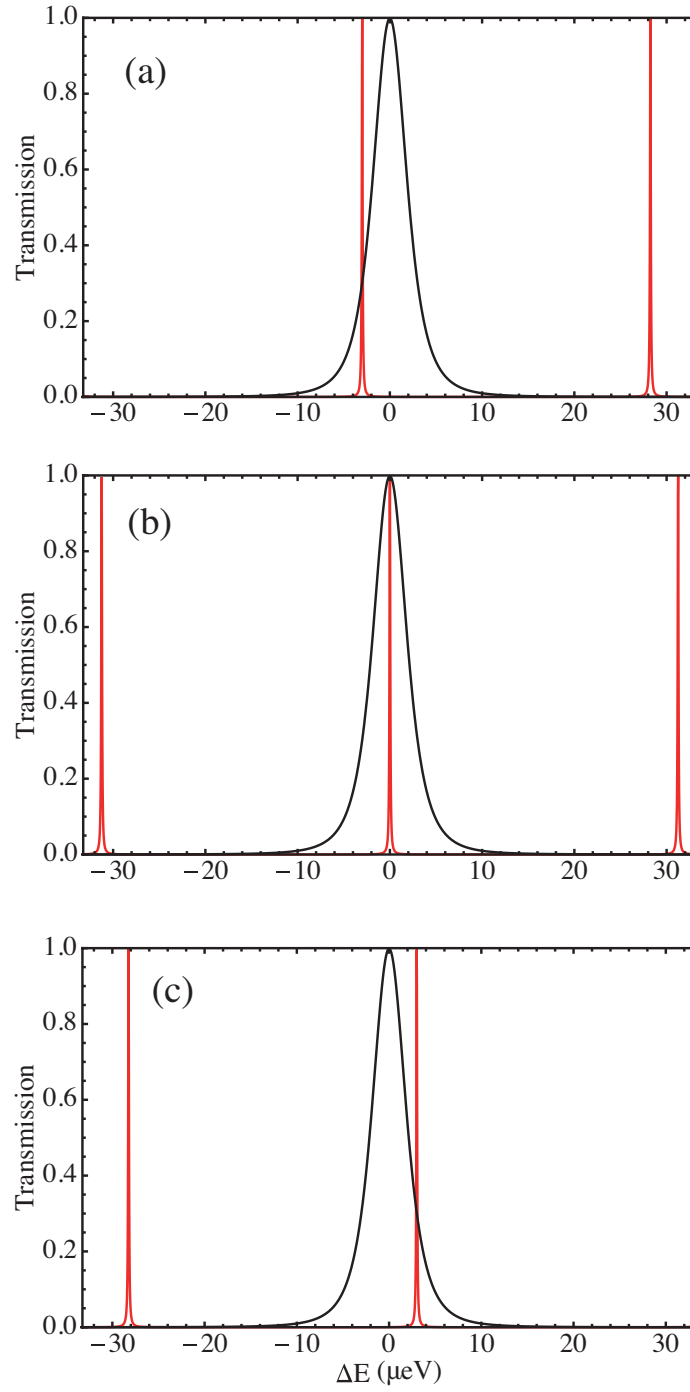


FIGURE 3.17 : Simulations représentant, d'une part, la fonction de transmission T d'une cavité Fabry-Pérot (traits pleins rouges) et, d'autre part, le spectre d'une raie de luminescence (traits pleins noirs) dont le temps de cohérence est 200 ps. Les figures (a), (b) et (c) correspondant à trois positions du miroir mobile, montrent le principe du balayage en énergie de la raie de luminescence.

dont le temps de cohérence T_2 vaut 200 ps, valeur typique des temps de cohérence mesurée dans la suite. L'abscisse, ΔE , représente l'écart en énergie par rapport au centre de la raie de luminescence dont on veut mesurer la largeur. Afin d'illustrer le protocole de mesure, les trois figures (a), (b) et (c) correspondent à trois positions différentes du miroir mobile de l'interféromètre. On voit clairement qu'un des pics de transmission effectue un balayage de la raie de luminescence en fonction de la position du miroir mobile, c'est-à-dire que la raie est découpée morceaux par morceaux puis reconstituée.

Par conséquent, d'après la formule (3.18), le spectre du champ électromagnétique sortant du Fabry-Pérot doit être bien plus fin que la raie de luminescence incidente, typiquement la largeur du spectre transmis est de l'ordre de grandeur de la largeur d'un pic de transmission, γ . Ce fait est confirmé si nous regardons le champ transmis en fonction du temps.

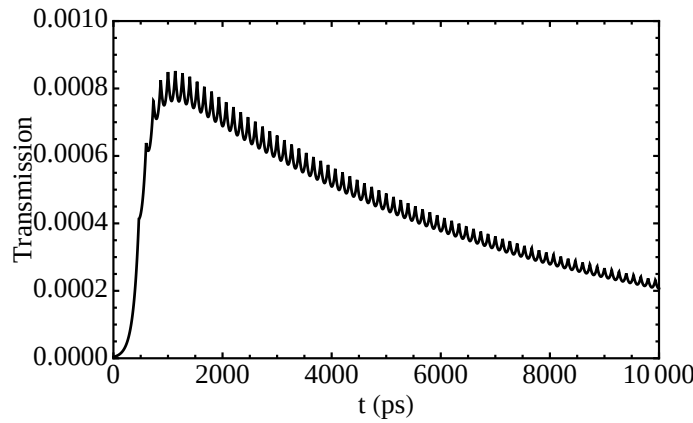


FIGURE 3.18 : Intensité du champ électrique transmis par l'interféromètre de Fabry-Pérot en fonction du temps. Le temps de cohérence du train d'ondes incident étant de 200 ps.

La figure (3.18), obtenue en résolvant les équations du Fabry-Pérot dans le domaine temporel, montre que le train d'ondes sortant, correspondant à la situation de la figure (3.17b), possède une extension temporelle de l'ordre de 1000 ps. Ainsi, l'opération de filtrage spectral revient bien à allonger temporellement le train d'ondes. La forme de l'enveloppe ressemble à une exponentielle décroissante, c'est en fait la transformée de Fourier de la fonction $T(\omega)$ (équation (3.12)). De plus, le fait que l'exponentielle ne soit pas lisse provient du temps de cohérence fini du train d'ondes entrant.

Pour information, nous présentons sur la figure (3.19) l'intensité réfléchie par le miroir d'entrée du Fabry-Pérot. On observe un pic de réflexion intense juste après le temps $t = 0$ dont l'intensité vaut 99% de celle de l'onde incidente. Ensuite, après un aller-retour dans la cavité, le même déclin exponentiel que celui obtenu en transmission sur la figure (3.18) est observé.

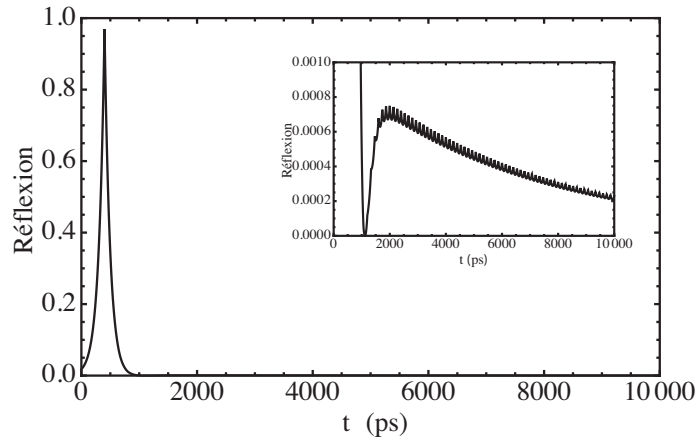


FIGURE 3.19 : Intensité du champ électrique réfléchi par le miroir d'entrée du Fabry-Pérot. En insert, agrandissement montrant le déclin exponentiel aux temps longs.

Les mesures de *splitting* δ_1 et la détermination de l'orientation de la polarisation linéaire des états propres d'une paire électron-trou sont présentées dans le quatrième chapitre.

3.7.2 Interféromètre de Michelson pour le contrôle cohérent

Dans un montage de contrôle cohérent, l'interféromètre de Michelson est utilisé pour dédoubler l'impulsion entrante en deux impulsions d'intensité identique, chacune parcourant un bras de l'interféromètre. Il est donc possible de contrôler le délai, δ , entre les deux impulsions, en modifiant la longueur d'un des bras de l'interféromètre. Le miroir de ce bras est placé sur une ligne à retard autorisant un déplacement maximal de 30 cm par pas de 0.1 mm.

Néanmoins, une expérience de contrôle cohérent nécessite un contrôle précis et une grande stabilité, sur des échelles de temps de quelques minutes, de la différence de phase, ϕ , entre les deux impulsions. Ces deux contraintes expérimentales impliquent l'utilisation d'un interféromètre de Michelson dont la différence de marche est stabilisée par un système électronique de contre-réaction agissant sur le déplacement fin du miroir fixe monté sur un déplacement piézoélectrique. En effet, un système d'asservissement est indispensable afin de réduire l'amplitude des fluctuations de la différence de marche provoquées par des vibrations mécaniques et par les fluctuations de l'indice de réfraction de l'air dans les bras de l'interféromètre. Sur une échelle de temps plus longue, quelques minutes, la contre-réaction permet de compenser toute dérive plus lente liée, par exemple, aux variations de température.

L'asservissement de la différence de marche nécessite l'utilisation d'un second laser, dit de contrôle, dont les faisceaux suivent exactement les mêmes trajectoires dans les

deux bras de l'interféromètre que les deux impulsions délivrées par le laser TiSa. Les deux faisceaux du laser de contrôle, un laser Hélium-Néon continu, stabilisé en fréquence, se superposent spatialement à la sortie de l'interféromètre donnant lieu à des interférences dépendant de la différence de marche entre les deux faisceaux. L'intensité des interférences, mesurée par une photodiode, est utilisée comme consigne d'asservissement de la position du déplacement piézoélectrique. Cette technique permet donc, en maintenant l'intensité constante des interférences, de stabiliser le déphasage entre les deux bras du Michelson. La précision sur la valeur de la différence de phase, ϕ , et le degré de stabilité de l'interféromètre sont calculés dans la section 3.7.2.d. Nous commençons par décrire le schéma général de l'interféromètre stabilisé puis nous détaillerons le dédoublement d'une impulsion et enfin la technique de contrôle de la différence de phase sera exposée [91].

3.7.2.a Schéma général du montage

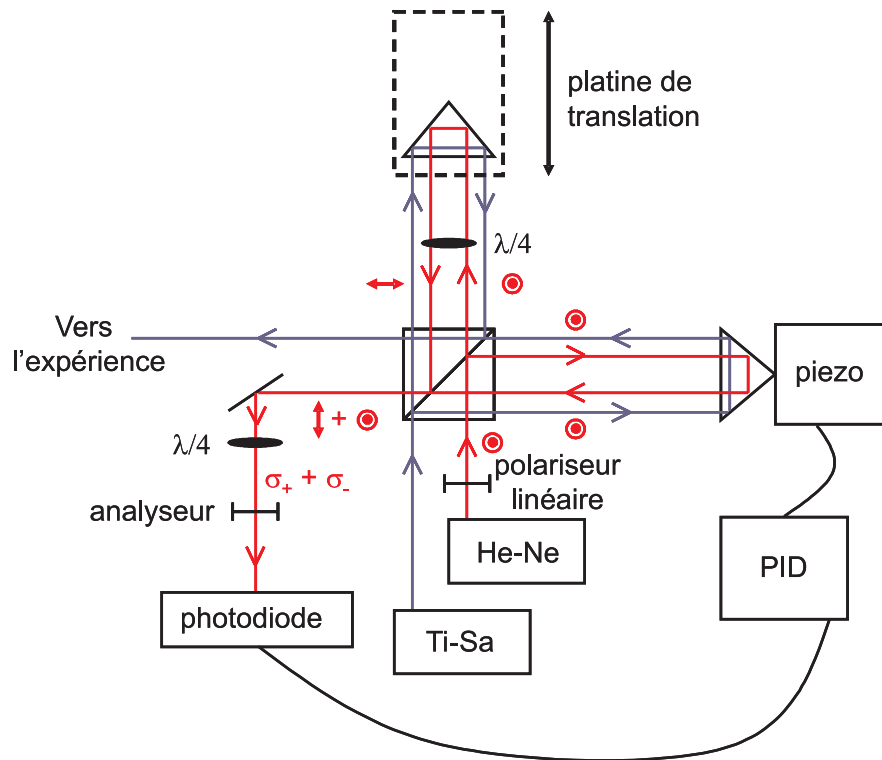


FIGURE 3.20 : Schéma de l'interféromètre de Michelson stabilisé. Les trajectoires suivies par le laser He-Ne (TiSa) sont schématisées en traits pleins rouges (bleus). Insert : schéma définissant les angles entre analyseur et direction de polarisation du laser He-Ne.

Le schéma du montage complet de l'interféromètre de Michelson stabilisé est représenté sur la figure (3.20). Le rétro réflecteur du bras mobile est monté sur une platine de translation autorisant un déplacement total de 30 cm. Le rétro réflecteur du bras fixe est

monté sur un déplacement piézoélectrique permettant des déplacements plus petits que la longueur d'onde.

Tout d'abord, nous détaillons le chemin optique suivi par une impulsion issue du laser TiSa. Le cube séparateur 50/50 divise l'impulsion incidente en deux impulsions d'intensité égale se propageant dans les deux bras de l'interféromètre. Après réflexion sur les rétroreflecteurs, les chemins optiques des deux impulsions se croisent de nouveau sur le cube séparateur et restent confondus après le cube. Seul le chemin optique allant vers l'échantillon figure sur le schéma étant donné que l'autre repart en direction du laser TiSa.

Le faisceau du laser HeNe continu suit quasiment le même chemin optique dans l'interféromètre mais sa polarisation, qui est représentée en rouge sur le schéma, est modifiée le long du trajet. Le laser génère un faisceau polarisé verticalement. La polarisation du faisceau se propageant dans le bras fixe n'est pas modifiée : elle reste verticale. Par contre, le faisceau parcourant le bras mobile traverse deux fois une lame quart d'onde dont les axes sont orientés à $\pm 45^\circ$ de la verticale. Après le second passage dans cette lame, la polarisation a donc tourné de 90° . Sur le cube séparateur, deux faisceaux d'intensité égale polarisés linéairement à 90° l'un de l'autre se recombinent. Ensuite, ces faisceaux traversent une lame quart d'onde puis un analyseur avant d'arriver sur une photodiode connectée au système d'asservissement du déplacement piézoélectrique.

3.7.2.b Dédoublément d'une impulsion

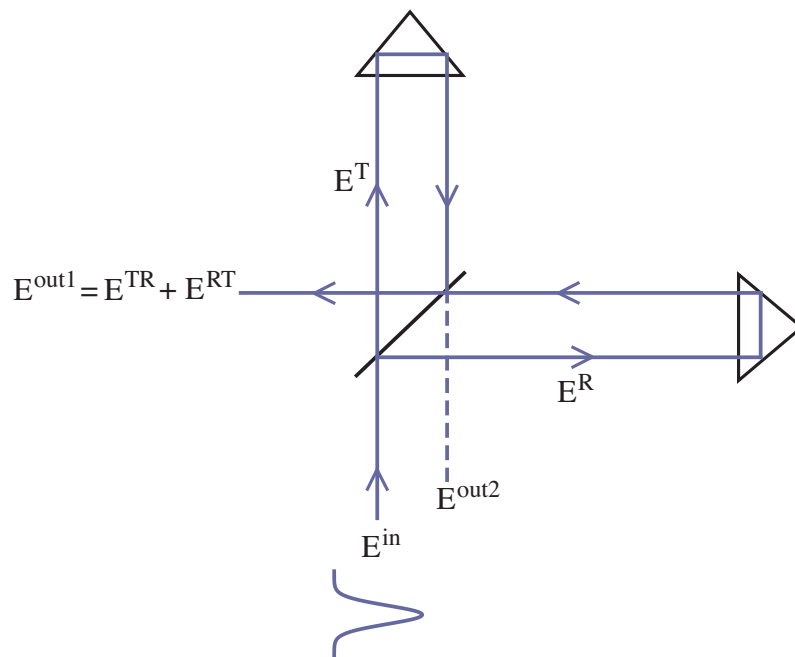


FIGURE 3.21 : Schéma simplifié de l'interféromètre de Michelson décrivant le dédoublement de l'impulsion entrante.

Soit $\mathbf{E}^{\text{in}}(t)$ le champ entrant dans l'interféromètre. La lame séparatrice divise le champ incident en un champ transmis $\mathbf{E}^{\text{T}}(t)$ et un champ réfléchi $\mathbf{E}^{\text{R}}(t)$, comme le montre la figure (3.21). Ces champs s'expriment en fonction du champ incident selon :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{T}}(t) &= t\mathbf{E}^{\text{in}}(t) \\ \mathbf{E}^{\text{R}}(t) &= -r\mathbf{E}^{\text{in}}(t)\end{aligned}\tag{3.26}$$

où t et r sont respectivement les coefficients de transmission et de réflexion en amplitude de la lame séparatrice. Nous prendrons $t = r = 1/\sqrt{2}$ pour une lame 50/50. Le signe moins dans la seconde relation (3.26) est dû au fait que la réflexion se fait d'un milieu moins réfringent (l'air) sur un milieu plus réfringent (le verre), d'après les formules de Fresnel [92]. Le champ total sortant par la voie 1, $\mathbf{E}^{\text{OUT1}}$, est la somme des deux champs $\mathbf{E}^{\text{TR}}$, champ d'abord transmis puis réfléchi par la lame 50/50, et $\mathbf{E}^{\text{RT}}$, champ d'abord réfléchi puis transmis, :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{TR}}(t) &= r\mathbf{E}^{\text{T}}(t - 2L/c - \delta/c) \\ \mathbf{E}^{\text{RT}}(t) &= t\mathbf{E}^{\text{R}}(t - 2L/c)\end{aligned}\tag{3.27}$$

L étant la longueur du bras fixe et δ la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Après substitution des équations (3.26) dans les équations (3.27), il vient :

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{TR}}(t) &= rt\mathbf{E}^{\text{in}}(t - 2L/c - \delta/c) \\ \mathbf{E}^{\text{RT}}(t) &= -tr\mathbf{E}^{\text{in}}(t - 2L/c)\end{aligned}\tag{3.28}$$

On en déduit que le champ total $\mathbf{E}^{\text{OUT1}}(t)$ s'écrit en fonction du champ incident, $\mathbf{E}^{\text{in}}$:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{OUT1}}(t) &= \mathbf{E}^{\text{TR}}(t) + \mathbf{E}^{\text{RT}}(t) \\ &= \frac{1}{2} \left[\mathbf{E}^{\text{in}} \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) - \mathbf{E}^{\text{in}} \left(t - \frac{2L}{c} \right) \right]\end{aligned}\tag{3.29}$$

De même, le champ total sortant par la voie 2, $\mathbf{E}^{\text{OUT2}}$, s'écrit en fonction de $\mathbf{E}^{\text{in}}$:

$$\mathbf{E}^{\text{OUT2}}(t) = \frac{1}{2} \left[\mathbf{E}^{\text{in}} \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) + \mathbf{E}^{\text{in}} \left(t - \frac{2L}{c} \right) \right]\tag{3.30}$$

Le champ incident $\mathbf{E}^{\text{in}}$ étant une impulsion courte de durée $\tau = 1$, on peut mettre le champ électrique $\mathbf{E}^{\text{in}}$ sous la forme du produit d'une enveloppe sécante hyperbolique et d'une porteuse suivant : $\mathbf{E}^{\text{in}} = \text{sech}(t) \cos \omega t \mathbf{e}_y$. Les champs $\mathbf{E}^{\text{OUT1}}$ et $\mathbf{E}^{\text{OUT2}}$ se réécrivent

de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{\text{OUT1}}(t) = & \frac{1}{2} \left[\text{sech} \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) \cos \left(\omega \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) \right) \right. \\ & \left. + \text{sech} \left(t - \frac{2L}{c} \right) \cos \left(\omega \left(t - \frac{2L}{c} \right) + \pi \right) \right] \mathbf{e}_y \end{aligned} \quad (3.31)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{\text{OUT2}}(t) = & \frac{1}{2} \left[\text{sech} \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) \cos \left(\omega \left(t - \frac{2L}{c} - \frac{\delta}{c} \right) \right) \right. \\ & \left. + \text{sech} \left(t - \frac{2L}{c} \right) \cos \left(\omega \left(t - \frac{2L}{c} \right) \right) \right] \mathbf{e}_y \end{aligned} \quad (3.32)$$

L'interféromètre produit deux impulsions dans la voie 1 avec un déphasage $\pi + \delta\omega/c$ et deux impulsions dans la voie 2 avec un déphasage $\delta\omega/c$. La différence de déphasage de π entre les deux voies assure la conservation de l'énergie lorsque le délai, δ , est plus petit que la durée d'une impulsion et que des interférences ont lieu.

3.7.2.c Contrôle de la différence de phase des deux impulsions

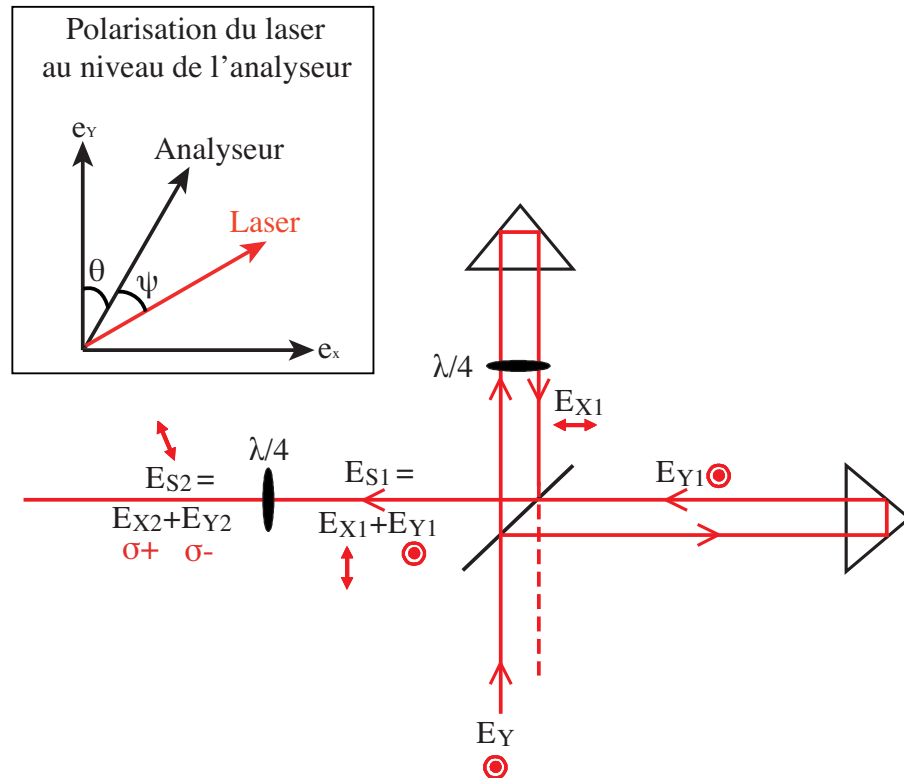


FIGURE 3.22 : Schéma simplifié montrant les changements de la polarisation du laser de contrôle dans l'interféromètre.

A la sortie de l'interféromètre Michelson, les deux ondes planes polarisées linéairement et orthogonalement entre elles, engendrent un champ $\mathbf{E}_{S1}$ polarisé elliptiquement si la

différence de marche est non nulle. Le champ parcourant le bras fixe, $\mathbf{E}_{Y1}$, reste polarisé selon l'axe $\mathbf{e}_y$ comme le champ laser incident. Celui se propageant dans le bras mobile, $\mathbf{E}_{X1}$, traverse deux fois une lame quart d'onde dont les axes neutres $\mathbf{i}$ et $\mathbf{j}$ sont orientés à 45° des axes $\mathbf{e}_y$ et $\mathbf{e}_x$, engendrant une polarisation linéaire orientée selon l'axe $\mathbf{e}_x$.

$$\mathbf{E}_{S1} = \mathbf{E}_{X1} + \mathbf{E}_{Y1} = \frac{E_0}{2} \cos(\omega t + \phi) \mathbf{e}_x + \frac{E_0}{2} \cos \omega t \mathbf{e}_y \quad (3.33)$$

Ensuite, cette polarisation elliptique traverse une lame quart d'onde dont les axes neutres sont orientés à 45° des axes $\mathbf{e}_y$ et $\mathbf{e}_x$. En projetant sur les axes neutres, on trouve pour la composante $\mathbf{E}_{X1}$:

$$\mathbf{E}_{X1} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} (\cos(\omega t + \phi) \mathbf{i} - \cos(\omega t + \phi) \mathbf{j}) \quad (3.34)$$

Soit $\mathbf{E}_{X2}$ le champ résultant de $\mathbf{E}_{X1}$ après son passage dans la lame quart d'onde.

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{X2} &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [\cos(\omega t + \pi/2 + \phi) \mathbf{i} - \cos(\omega t + \phi) \mathbf{j}] \\ &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [\sin(\omega t + \phi) \mathbf{i} - \cos(\omega t + \phi) \mathbf{j}] \end{aligned} \quad (3.35)$$

Le champ $\mathbf{E}_{X2}$ possède donc une polarisation circulaire dans le sens trigonométrique.

De même pour le champ $\mathbf{E}_{Y1}$ qui est déphasé de ϕ par rapport à $\mathbf{E}_{X1}$:

$$\mathbf{E}_{Y1} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [\cos \omega t \mathbf{i} + \cos \omega t \mathbf{j}] \quad (3.36)$$

Soit $\mathbf{E}_{Y2}$ le champ résultant de $\mathbf{E}_{Y1}$ après son passage dans la lame quart d'onde.

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{Y2} &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [\cos(\omega t + \pi/2) \mathbf{i} + \cos \omega t \mathbf{j}] \\ &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [\sin \omega t \mathbf{i} + \cos \omega t \mathbf{j}] \end{aligned} \quad (3.37)$$

Le champ $\mathbf{E}_{Y2}$ possède donc une polarisation circulaire dans le sens antitrigonométrique.

Le champ total $\mathbf{E}_{S2}$ après la lame quart d'onde, somme des champs $\mathbf{E}_{X2}$ et $\mathbf{E}_{Y2}$, possède une polarisation linéaire faisant un angle $-\phi/2$ avec l'axe $\mathbf{j}$ de la lame. En effet,

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{S2} &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \{ [\sin(\omega t + \phi) + \sin \omega t] \mathbf{i} + [-\cos(\omega t + \phi) + \cos \omega t] \mathbf{j} \} \\ &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin\left(\omega t + \frac{\phi}{2}\right) \left[\sin \frac{\phi}{2} \mathbf{i} + \cos \frac{\phi}{2} \mathbf{j} \right] \end{aligned} \quad (3.38)$$

Si on appelle θ l'angle entre l'axe $\mathbf{e}_y$ et la direction de l'analyseur, on trouve alors que l'angle ψ entre l'analyseur et la polarisation linéaire du champ $\mathbf{E}_{S2}$ est le suivant :

$$\psi = \frac{\phi}{2} - \theta - \frac{\pi}{4} \quad (3.39)$$

Tant et si bien que la valeur moyenne de l'intensité après l'analyseur vaut :

$$\begin{aligned}\langle I \rangle &= \frac{E_0^2}{4} \cos^2 \psi \\ &= \frac{E_0^2}{4} \cos^2 \left(\frac{\phi}{2} - \theta - \frac{\pi}{4} \right)\end{aligned}\quad (3.40)$$

Nous exploitons le fait que l'intensité dépend du déphasage entre les deux bras du Michelson pour contrôler et stabiliser ce déphasage avec une boucle d'asservissement. L'intensité mesurée par la photodiode est utilisée comme consigne pour asservir un déplacement piézoélectrique sur lequel est fixé le miroir du bras fixe. Par conséquent, dans les deux cas de figure, contrôle de la différence de phase ou stabilisation de cette différence de phase, la position du déplacement piézoélectrique est ajustée de telle sorte à maintenir la valeur moyenne de l'intensité, $\langle I \rangle$, mesurée par la photodiode, égale à la consigne $\langle I \rangle_0$. La formule (3.40) montre que, pour une position donnée, θ , de l'analyseur, une variation de la différence de phase ϕ engendre une variation de l'intensité du signal mesuré par la photodiode. Cette variation provoque ensuite un léger déplacement du miroir fixe de telle sorte que l'intensité mesurée par la photodiode soit de nouveau égale à la consigne $\langle I \rangle_0$, qui est toujours obtenue pour la même valeur de la différence de phase ϕ . Dans le cas où nous voulons contrôler la valeur moyenne de ϕ , il faut tourner l'analyseur d'un angle $\Delta\theta$ particulier afin de modifier la différence de phase d'une quantité $\Delta\phi$. En effet, le fait de maintenir $\langle I \rangle$ constante entraîne la conservation de la somme $\frac{\phi}{2} - \theta$ constante, ce qui donne la relation suivante entre $\Delta\theta$ et $\Delta\phi$:

$$\Delta\theta = \frac{\Delta\phi}{2} \quad (3.41)$$

3.7.2.d Stabilité de l'interféromètre

La figure (3.23) montre la variation de l'intensité $\langle I \rangle$ mesurée par la photodiode en fonction du déphasage ϕ , d'après la formule (3.40). La consigne en intensité doit être choisie de telle sorte que l'amplitude des fluctuations de l'intensité moyenne engendre les fluctuations de la différence de phase d'amplitude la plus petite possible. Par conséquent, la valeur de consigne $\langle I \rangle_0$ est celle pour laquelle la tangente à la courbe (3.23), au point d'ordonnée $\langle I \rangle_0$, possède la pente la plus grande en valeur absolue. Il faut donc choisir une valeur vérifiant :

$$\langle I \rangle_0 = \frac{I_{max}}{2} = \frac{E_0^2}{8} \quad (3.42)$$

La droite d'équation (3.42) est représentée en rouge sur la figure (3.23) et les points d'intersection (points rouges) sont les points possibles d'asservissement.

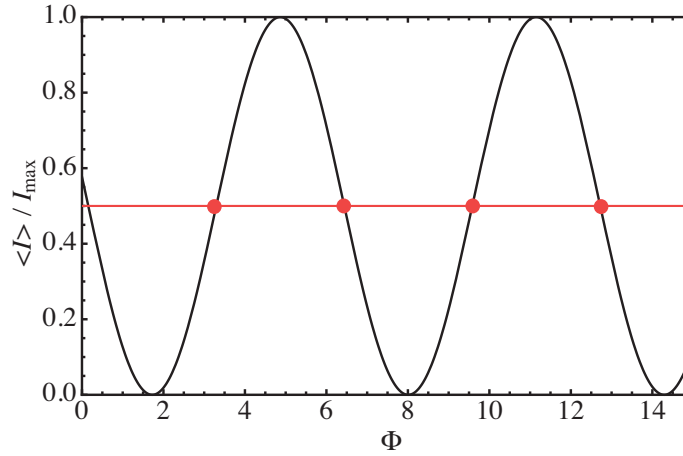


FIGURE 3.23 : Variations de l'intensité lumineuse arrivant sur la photodiode en fonction du déphasage ϕ entre les deux bras de l'interféromètre. La valeur de la consigne d'asservissement (droite rouge) est fixée à l'endroit où la tangente à la courbe noire possède la pente la plus grande (points rouges).

La pente de la tangente à ces points est donnée par l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \frac{d \langle I \rangle}{d\phi} &= -\frac{E_0^2}{8} \sin \left(\phi - 2\theta - \frac{\pi}{2} \right) \\ &= -\frac{E_0^2}{8} \end{aligned} \quad (3.43)$$

Les fluctuations ΔI_0 autour de $\langle I \rangle_0$ sont reliées aux fluctuations $\Delta\phi$ du déphasage selon la relation suivante :

$$\Delta I_0 = \frac{E_0^2}{8} \Delta\phi \quad (3.44)$$

Expérimentalement, le signal mesuré par la photodiode est une tension proportionnelle à l'intensité lumineuse. La figure (3.24a) montre l'oscillogramme représentant la tension aux bornes de la photodiode en fonction du temps lorsque la contre-réaction est débranchée et que le miroir monté sur le déplacement piézoélectrique effectue un mouvement oscillatoire. La tension n'est pas sinusoïdale parce que la période de l'oscillation n'est pas un multiple de la longueur d'onde. Néanmoins, la tension maximale, V_{max} , est bien proportionnelle à l'intensité lumineuse maximale I_{max} : $V_{max} = C I_{max}$, où C est une constante. La figure (3.24b) montre le signal délivré par la photodiode lorsque la contre-réaction est branchée. L'amplitude des fluctuations de tension, ΔV_0 , est à nouveau proportionnelle à l'amplitude des fluctuations d'intensité lumineuse ΔI_0 : $\Delta V_0 = C \Delta I_0$.

A partir des oscillogrammes de la figure (3.24), nous pouvons calculer l'incertitude, $\Delta\phi$, que l'on obtient sur la différence de phase. La valeur maximale V_{max} de la tension est de 7.4 V et l'amplitude des fluctuations ΔV_0 est de 0.150 V. Remarquons que le point d'asservissement choisi est stable étant donné que les fluctuations, presque 100 fois plus

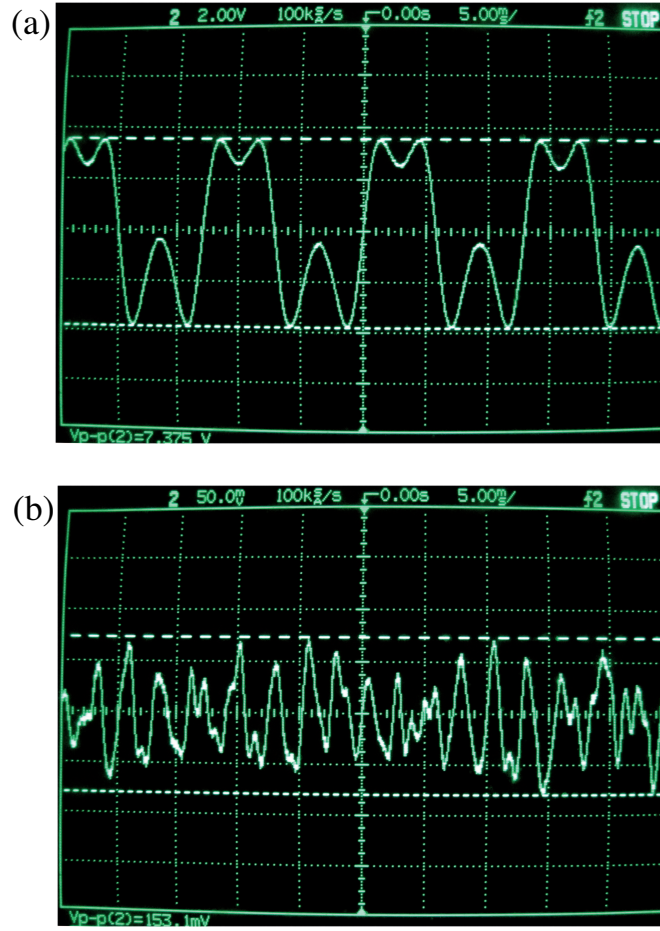


FIGURE 3.24 : (a) Oscillogramme représentant la variation de tension aux bornes de la photodiode en fonction de la position du miroir monté sur déplacement piézoélectrique, la contre-réaction étant débranchée. (b) Oscillogramme représentant le bruit de la tension aux bornes de la photodiode lorsque l'asservissement fonctionne.

petites que la tension maximale, ne sont pas assez importantes pour atteindre un des deux points d'asservissement voisins. Il vient pour $\Delta\phi$:

$$\begin{aligned}\Delta\phi &= \frac{2\Delta I_0}{I_{max}} = \frac{2C \Delta V_0}{C V_{max}} \\ &= \frac{2 \times 0.150}{7.4} = 0.04 \text{ rad}\end{aligned}\quad (3.45)$$

La précision de la différence de phase est donc de 3° .

Ces fluctuations correspondent à des fluctuations ΔL de position du miroir asservi d'amplitude égale à :

$$\begin{aligned}\Delta L &= \Delta\phi \frac{\lambda}{2\pi} \\ &= \frac{\lambda}{157}\end{aligned}\quad (3.46)$$

Elles sont suffisamment petites pour nous permettre de contrôler la différence de phase entre les deux impulsions sortant de l'interféromètre de Michelson. Nous verrons, dans le cinquième chapitre, comment ce paramètre intervient dans la manipulation de l'état d'une boîte quantique.

Le montage expérimental réunit tous les ingrédients afin de manipuler et de détecter optiquement la transition fondamentale d'une boîte quantique unique. Premièrement, l'utilisation de guides d'onde rend possible l'excitation résonnante d'une boîte et la détection de sa luminescence à la même énergie. Deuxièmement, le montage de microphotoluminescence et la stabilité mécanique du cryostat permettent de détecter et de résoudre la luminescence d'une boîte quantique unique. Ces deux points nous ont permis d'atteindre un régime de couplage fort entre la lumière et une boîte quantique, défini par le fait que la période de Rabi, période d'oscillation de la population du niveau excité de la boîte, est beaucoup plus petite que le temps de vie et le temps de cohérence de ce niveau. Les résultats montrant les oscillations de Rabi sont présentés dans le quatrième chapitre. Enfin, la stabilisation de la différence de marche de l'interféromètre de Michelson, de l'ordre du centième de longueur d'onde, rend possible la manipulation par contrôle cohérent du système à deux niveaux constitué par la boîte quantique. Les résultats expérimentaux concernant le contrôle cohérent et les mesures de temps de cohérence sont détaillés dans le cinquième chapitre.

Chapitre 4

Interaction lumière-matière : oscillations de Rabi

Sommaire

4.1	Description de l'interaction	102
4.1.1	Couplage lumière-matière	102
4.1.2	Opérateur moment dipolaire	103
4.1.3	Système isolé	105
4.1.4	Système en interaction avec son environnement	109
4.1.5	Interprétation des temps de relaxation	110
4.1.6	Équations de Bloch optiques	111
4.2	Excitation continue	115
4.2.1	Solutions des équations de Bloch optiques	116
4.2.2	Fluorescence de résonance d'un émetteur unique	117
4.3	Excitation impulsionnelle	119
4.3.1	Lien entre les oscillations de Rabi en fonction du temps et de la puissance	119
4.4	Résultats expérimentaux	128
4.4.1	Échantillon A	128
4.4.2	Échantillon B	132

4.1 Description de l'interaction

Le système à deux niveaux est l'un des systèmes modèles de la mécanique quantique. Nous avons vu que la transition fondamentale d'une boîte quantique peut être considérée idéalement comme un système à deux niveaux. Dans ce chapitre, nous étudions l'interaction d'un système à deux niveaux, possédant un moment dipolaire μ non nul, avec un champ électromagnétique classique continu ou impulsionnel.

Nous commençons par énoncer les résultats concernant un système à deux niveaux qui interagit uniquement avec le champ électrique appliqué, typiquement un champ cohérent généré par un laser. Cela signifie que le système est isolé si l'interaction avec la lumière est débranchée.

Ensuite, nous montrons comment il est possible de généraliser les résultats obtenus au cas d'un système qui n'est plus isolé de son environnement. Toutes les interactions avec l'environnement, autres que celle avec le champ électrique appliqué (par exemple, l'interaction du dipôle avec les fluctuations électromagnétiques du vide générant l'émission spontanée, l'interaction électron-phonon, électron-électron) sont prises en compte de manière phénoménologique dans le formalisme de l'opérateur densité.

4.1.1 Couplage lumière-matière

Hamiltonien $\mathbf{A} \cdot \hat{\mathbf{p}}$

On montre que, dans la jauge de Coulomb, le hamiltonien d'interaction, $\hat{H}_{int}$, entre une particule de charge q , de masse m et un champ électromagnétique caractérisé par son potentiel vecteur $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ s'écrit exactement de la manière suivante [93] :

$$\hat{H}_{int} = -\frac{q}{m}\hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + \frac{q^2 A^2(\mathbf{r}, t)}{2m} \quad (4.1)$$

Dans le cas où les longueurs d'onde de la lumière incidente et émise sont beaucoup plus grandes que les dimensions du système, le potentiel vecteur, $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ peut être remplacé par sa valeur, $\mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t)$, en $\mathbf{r}_0$, position du centre du système. Cette approximation, connue sous le nom d'approximation des grandes longueurs d'onde, est valable dans le cas où le système est une boîte quantique où la dimension la plus grande est de l'ordre de 50 nm, longueur maximale des fluctuations d'interface de GaAs, alors que la longueur d'onde d'excitation et d'émission est de 750 nm.

De plus, l'approximation des grandes longueurs d'onde permet de ne conserver que le premier terme du hamiltonien d'interaction (4.1) parce que le deuxième terme, $\frac{q^2 A^2(\mathbf{r}_0, t)}{2m}$, évalué au point $\mathbf{r}_0$ est un scalaire et ne peut donc pas provoquer de transition entre différents états électroniques. Par conséquent, le hamiltonien d'interaction pertinent est

le suivant :

$$\hat{H}_{int} = -\frac{q}{m} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t) \quad (4.2)$$

Par un changement de jauge adéquat, le hamiltonien (4.2) peut être exprimé en fonction d'opérateurs dont le sens physique est plus intuitif : le moment dipolaire, μ et le champ électrique $\mathbf{E}$. Les deux formes du hamiltonien sont équivalentes dans l'approximation des grandes longueurs d'onde.

Hamiltonien $\hat{\mu} \cdot \mathbf{E}$

On montre que, dans la jauge de Göppert-Mayer définie par [93] :

$$F(\mathbf{r}, t) = -(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t), \quad (4.3)$$

le nouvel hamiltonien d'interaction, H'_{int} , s'écrit comme il suit :

$$\hat{H}'_{int} = -\frac{q}{m} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) + \frac{q^2 A'^2(\mathbf{r}, t)}{2m} + q(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t) \quad (4.4)$$

où

$$\mathbf{A}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t) \quad (4.5)$$

Ainsi, dans l'approximation des grandes longueurs d'onde, c'est-à-dire en posant $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$, le hamiltonien d'interaction se réduit à l'expression suivante :

$$\hat{H}'_{int} = q(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}_0, t) \quad (4.6)$$

Or, $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ et par définition de l'opérateur moment dipolaire électrique suivante :

$$\hat{\mu} = q(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \quad (4.7)$$

il s'en suit pour le hamiltonien d'interaction :

$$\hat{H}'_{int} = -\hat{\mu} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t) \quad (4.8)$$

Le hamiltonien (4.8) porte le nom de hamiltonien dipolaire électrique. C'est sous cette dernière forme que le couplage entre la lumière et les boîtes quantiques sera traité.

Dans la section suivante, nous présentons plus en détail l'opérateur moment dipolaire.

4.1.2 Opérateur moment dipolaire

4.1.2.a Forme de l'opérateur

L'opérateur moment dipolaire $\hat{\mu}$ est un opérateur impair par rapport à l'origine du repère, prise à la position du système à deux niveaux considéré. Dans ce cas, $\mathbf{r}_0 = \mathbf{0}$ et il vient pour le moment dipolaire :

$$\hat{\mu} = q\mathbf{r} \quad (4.9)$$

La matrice 2×2 , représentant cet opérateur dans la base propre $\{|0\rangle, |1\rangle\}$ du hamiltonien sans couplage $\hat{H}_0$, possède des éléments nuls sur sa diagonale si les états propres $|0\rangle$ et $|1\rangle$ ont une parité bien définie. En effet, dans ce cas les intégrales suivantes s'annulent :

$$\langle 0|\hat{\mu}|0\rangle = \langle 1|\hat{\mu}|1\rangle = 0 \quad (4.10)$$

La matrice est donc purement non-diagonale. Par ailleurs, les éléments non-diagonaux peuvent être choisis réels, sans perte de généralité, en fixant la phase relative des états $|0\rangle$ et $|1\rangle$.

Finalement, l'opérateur moment dipolaire, $\hat{\mu}$, d'un système à deux niveaux est représenté par une matrice 2×2 ne possédant que des éléments non-diagonaux qui peuvent être choisis réels et donc égaux, à cause de l'hermiticité de l'opérateur. Il s'écrit donc sous la forme suivante :

$$\hat{\mu} = \mu_{10} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.11)$$

Il est intéressant d'écrire l'opérateur moment dipolaire sous la forme de la somme de deux termes : sa valeur moyenne, $\langle \hat{\mu} \rangle$, et ses fluctuations, $\delta\hat{\mu}$:

$$\hat{\mu} = \langle \hat{\mu} \rangle + \delta\hat{\mu} \quad (4.12)$$

En effet, nous montrons que les termes de cohérence, σ_{10} et σ_{01} , de l'opérateur densité s'interprètent physiquement comme l'amplitude moyenne de l'oscillation dipolaire.

4.1.2.b Moyenne quantique

Par définition de la moyenne quantique d'un opérateur lorsque l'état du système est décrit par la matrice densité ρ , le moment dipolaire moyen se calcule de la manière suivante :

$$\langle \hat{\mu} \rangle = \text{Tr} [\rho \hat{\mu}] = \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{10} \\ \sigma_{01} & \sigma_{00} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & \mu_{10} \\ \mu_{10} & 0 \end{pmatrix} \right] \quad (4.13)$$

Le calcul de la trace du produit matriciel donne le résultat suivant :

$$\langle \hat{\mu} \rangle = \mu_{10} (\sigma_{10} + \sigma_{01}) \quad (4.14)$$

L'équation (4.14) montre que la somme des deux termes de cohérence est proportionnelle à la moyenne du moment dipolaire. Cette formule donne une interprétation très physique des cohérences quantiques introduites formellement dans la définition (4.37) de l'opérateur densité. Pour un dipôle électrique, la somme des deux termes de cohérence, en facteur de l'élément de matrice réel μ_{10} est égale à la valeur moyenne du moment dipolaire du système à deux niveaux.

Pour terminer la description de l'opérateur moment dipolaire, il nous reste à estimer ses fluctuations autour de la valeur moyenne que nous venons de calculer.

4.1.2.c Écart-type

Ne connaissant pas directement les fluctuations $\delta\hat{\mu}$ du moment dipolaire, une façon de quantifier ces fluctuations est de calculer l'écart-type :

$$\Delta\mu = \sqrt{\langle \hat{\mu}^2 \rangle - \langle \hat{\mu} \rangle^2} \quad (4.15)$$

Calculons la valeur moyenne du carré du moment dipolaire de la manière suivante :

$$\langle \hat{\mu}^2 \rangle = \text{Tr} [\rho \hat{\mu}^2] = \text{Tr} \left[\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{10} \\ \sigma_{01} & \sigma_{00} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & \mu_{10} \\ \mu_{10} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 & \mu_{10} \\ \mu_{10} & 0 \end{pmatrix} \right] \quad (4.16)$$

On obtient :

$$\langle \hat{\mu}^2 \rangle = \mu_{10}^2 (\sigma_{11} + \sigma_{00}) = \mu_{10}^2 \quad (4.17)$$

L'expression de l'écart-type, défini par l'équation (4.15), est alors la suivante :

$$\Delta\mu = |\mu_{10}| \sqrt{1 - (\sigma_{10} + \sigma_{01})^2} \quad (4.18)$$

A partir de la formule (4.14), on observe que la valeur moyenne du moment dipolaire d'un état pur, en l'occurrence $|0\rangle$ ou $|1\rangle$, s'annule étant donné que les cohérences sont nulles pour ces états. Néanmoins, un système à deux niveaux préparé dans un état pur interagit tout de même avec un champ électromagnétique à cause des fluctuations non nulles du moment dipolaire. En effet, l'équation (4.18) montre que l'écart-type possède sa valeur maximale, μ_{10} , quand le système est dans un état pur. Il est intéressant de noter que, lorsque le système est dans l'état excité, ce sont à la fois les fluctuations du champ électromagnétique du vide et les fluctuations du moment dipolaire qui sont à l'origine de l'émission spontanée. Dans la suite, à la place de μ_{10} , nous écrirons seulement μ , qu'il ne faut pas confondre avec l'opérateur $\hat{\mu}$.

4.1.3 Système isolé

Il y a deux manières générales de résoudre ce problème qui sont complètement équivalentes dans le cas d'un système isolé de son environnement.

La première consiste à chercher l'évolution temporelle des coefficients complexes $C_0(t)$ et $C_1(t)$ qui interviennent dans le ket $|\psi(t)\rangle$ décrivant l'état du système à deux niveaux :

$$|\psi(t)\rangle = C_0(t)|0\rangle + C_1(t)|1\rangle \quad (4.19)$$

Les coefficients $C_0(t)$ et $C_1(t)$ étant des grandeurs complexes, il est évident que ce problème est un problème à quatre inconnues réelles.

La seconde manière de procéder consiste à chercher, non pas directement les coefficients C_0 et C_1 en fonction du temps mais des combinaisons de ces coefficients qui possèdent

un sens physique propre. Ces nouvelles variables sont regroupées dans une matrice 2×2 , notée $\rho(t)$ dont l'évolution temporelle donne autant d'informations que l'évolution du ket $|\psi(t)\rangle$. Cette matrice, appelée opérateur densité, est formée de la manière suivante [94] :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} C_1 C_1^* & C_1 C_0^* \\ C_1^* C_0 & C_1 C_1^* \end{pmatrix} \quad (4.20)$$

On voit apparaître sur la diagonale de la matrice les populations du niveau excité en fonction du temps, $C_1 C_1^*(t)$, et du niveau fondamental, $C_0 C_0^*(t)$. Les termes non-diagonaux, complexes conjugués l'un de l'autre, sont appelés cohérences quantiques. Nous avons vu, dans la section 4.1.2, que ces termes représentent physiquement l'amplitude de l'oscillation du dipôle constitué par le système à deux niveaux.

Le formalisme de l'opérateur densité est important dans la suite parce que, contrairement au formalisme utilisant les fonctions d'onde, il est bien adapté à la prise en compte des phénomènes de décohérence que nous étudierons plus en détails dans la fin du quatrième chapitre et dans le cinquième chapitre.

4.1.3.a Équation de Schrödinger du système à deux niveaux

Dans cette sous-section, nous présentons la résolution du système à deux niveaux en interaction avec une onde électromagnétique monochromatique résonnante avec la transition dipolaire.

Système physique

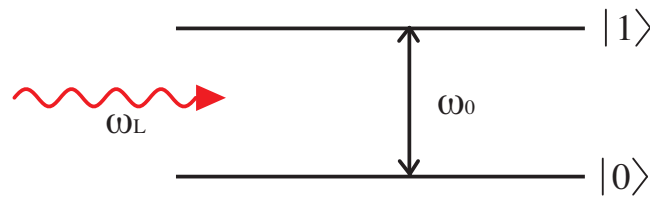


FIGURE 4.1 : Schéma du système à deux niveaux. ω_0 est la pulsation de résonance du système et ω_L est la fréquence du laser d'excitation.

Le hamiltonien, $\hat{H}$, du système à deux niveaux schématisé sur la figure (4.1), en interaction avec la lumière contient un terme d'évolution libre, $\hat{H}_0$, et un terme d'interaction, $\hat{H}_{int}$, ce qui conduit à :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \quad (4.21)$$

où le hamiltonien libre s'écrit, par définition des énergies propres E_0 et E_1 sous la forme suivante :

$$\hat{H}_0 = E_0 |0\rangle\langle 0| + E_1 |1\rangle\langle 1| \quad (4.22)$$

et le hamiltonien d'interaction :

$$\hat{H}_{int} = W_t (|0\rangle\langle 1| + |1\rangle\langle 0|) \quad (4.23)$$

Dans l'approximation dipolaire électrique et l'approximation des grandes longueurs d'onde, le couplage W_t , à la résonance, s'écrit :

$$W_t = -\hbar\Omega \cos \omega_L t = -\hbar\Omega \cos \omega_0 t \quad (4.24)$$

Cet élément de matrice fait intervenir la pulsation de Rabi, Ω , défini par l'expression suivante :

$$\Omega = \frac{\mu\mathcal{E}}{\hbar} \quad (4.25)$$

où $\mathcal{E}$ est l'amplitude constante du champ électrique appliqué.

Evolution temporelle

L'évolution temporelle est trouvée en injectant le ket donné par l'expression (4.19) dans l'équation de Schrödinger ci-dessous :

$$i \hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = (\hat{H}_0 + \hat{H}_{int}) |\psi(t)\rangle \quad (4.26)$$

On obtient une équation sur les coefficients C_0 et C_1 qui est la suivante :

$$i \hbar \dot{C}_0 |0\rangle + i \hbar \dot{C}_1 |1\rangle = E_0 C_0 |0\rangle + E_1 C_1 |1\rangle + W_t (C_0 |1\rangle + C_1 |0\rangle) \quad (4.27)$$

Après identification des termes en facteurs des kets $|0\rangle$ et $|1\rangle$, on obtient le système d'équation différentielles couplées à coefficients dépendant du temps ci-dessous :

$$\begin{cases} i \hbar \dot{C}_0(t) = E_0 C_0(t) + W_t C_1(t) \\ i \hbar \dot{C}_1(t) = E_1 C_1(t) + W_t C_0(t) \end{cases} \quad (4.28)$$

Dans l'état actuel, le système d'équations (4.28) n'est pas soluble à cause des coefficients dépendants du temps. La résolution nécessite un changement de variable et une approximation que nous allons définir.

Changement de variables

Le changement de variable consiste à éliminer les énergies propres. On pose donc :

$$\begin{cases} C_0(t) = e^{-iE_0 t/\hbar} \alpha(t) \\ C_1(t) = e^{-iE_1 t/\hbar} \beta(t) \end{cases} \quad (4.29)$$

En injectant ces nouvelles variables dans les équations (4.28), on obtient le système suivant lorsque l'excitation est résonnante avec la transition :

$$\begin{cases} i \hbar \dot{\alpha}(t) = W_t e^{-i\omega_0 t} \beta(t) \\ i \hbar \dot{\beta}(t) = W_t e^{i\omega_0 t} \alpha(t) \end{cases} \quad (4.30)$$

où ω_0 est la différence des pulsations propres : $\omega_0 = E_1/\hbar - E_0/\hbar$.

Approximation séculaire

Pour en arriver à l'approximation séculaire, il faut utiliser l'expression (4.24) du couplage dans le système (4.30). Nous obtenons :

$$\begin{cases} \dot{\alpha}(t) = i \frac{\Omega}{2} \beta(t) (1 + e^{-2i\omega_0 t}) \\ \dot{\beta}(t) = i \frac{\Omega}{2} \alpha(t) (1 + e^{2i\omega_0 t}) \end{cases} \quad (4.31)$$

L'approximation séculaire consiste à moyenner les termes oscillant à la pulsation $2\omega_0$ à 0. Cela est justifié rigoureusement pourvu que la fréquence naturelle, Ω , des équations (4.31) soit beaucoup plus petite que ω_0 , ce qui sera toujours le cas dans les systèmes que nous étudions. Quand cette approximation n'est pas bonne, il faut résoudre le système (4.31), tel que dans la référence [95]. On peut donc résoudre simplement le système suivant à coefficients constants :

$$\begin{cases} \dot{\alpha}(t) = i \frac{\Omega}{2} \beta(t) \\ \dot{\beta}(t) = i \frac{\Omega}{2} \alpha(t) \end{cases} \quad (4.32)$$

Quand le système à deux niveaux est dans son état fondamental à l'instant initial où l'interaction est branchée, la solution du système d'équations (4.32) est la suivante :

$$\begin{cases} \alpha(t) = \cos\left(\frac{\Omega t}{2}\right) \\ \beta(t) = i \sin\left(\frac{\Omega t}{2}\right) \end{cases} \quad (4.33)$$

Si bien que, d'après les équations (4.34), (4.29) et (4.33), l'état du système est donné par la fonction d'onde qui suit :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0 t/\hbar} \cos\left(\frac{\Omega t}{2}\right) |0\rangle + i e^{-iE_1 t/\hbar} \sin\left(\frac{\Omega t}{2}\right) |1\rangle \quad (4.34)$$

Les populations des niveaux excité, $C_1 C_1^* = \beta \beta^*$, et fondamental, $C_0 C_0^* = \alpha \alpha^*$, oscillent donc dans le temps à la pulsation de Rabi, Ω . Elles sont représentées sur la figure (4.2).

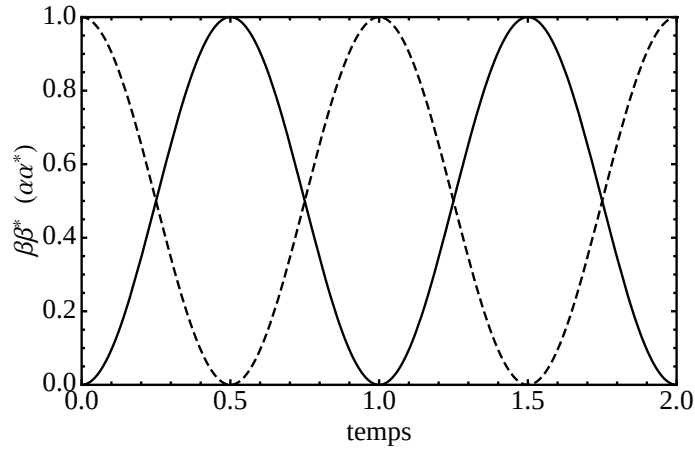


FIGURE 4.2 : Oscillations de Rabi : populations du niveau excité (trait plein) et du niveau fondamental (pointillés) en fonction du temps.

4.1.3.b Opérateur densité

Dans le formalisme de l'opérateur densité, l'évolution temporelle du système dont l'état est représenté par la matrice $\rho(t)$ est donnée par l'équation suivante [96] :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [\hat{H}, \rho(t)] \quad (4.35)$$

La résolution de cette équation donne évidemment les mêmes résultats que ceux obtenus à partir de la résolution de l'équation de Schrödinger (4.26). L'avantage de ce formalisme réside dans le fait qu'il est adapté à la description de certains systèmes quantiques non-isolés, pourvu que leur interaction avec les degrés de liberté de l'environnement puisse être décrite phénoménologiquement par l'ajout de termes de relaxation dans l'équation d'évolution (4.35).

4.1.4 Système en interaction avec son environnement

Formellement, les processus de relaxation peuvent être pris en compte en complétant l'équation (4.35) avec un terme de relaxation. Dans le cas d'un système non isolé, son évolution temporelle est régie par l'équation suivante :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [\hat{H}, \rho(t)] + i\hbar \left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax} \quad (4.36)$$

La matrice $\left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax}$ introduit deux paramètres phénoménologiques : le temps de vie du niveau excité, T_1 , qui représente le temps de relaxation de la population du niveau excité, et le temps de cohérence, T_2 , représentant le temps de relaxation des termes de cohérence de l'opérateur densité.

En définissant les éléments de la matrice densité de la manière suivante :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{10} \\ \sigma_{01} & \sigma_{00} \end{pmatrix}, \quad (4.37)$$

la matrice de relaxation s'écrit :

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax} = \begin{pmatrix} -\frac{\sigma_{11}}{T_1} & -\frac{\sigma_{10}}{T_2} \\ -\frac{\sigma_{01}}{T_2} & \frac{\sigma_{00}}{T_1} \end{pmatrix} \quad (4.38)$$

Nous donnons, dans la section suivante, l'interprétation physique de ces deux temps de relaxation : temps de vie et temps de cohérence.

4.1.5 Interprétation des temps de relaxation

Le temps de vie, T_1 , d'un système à deux niveaux est le temps moyen au bout duquel le système relaxe vers son état fondamental. Cette relaxation de la population du niveau excité, σ_{11} , est accompagnée d'une perte d'énergie du système engendrée par des processus d'émission de photons ou de phonons. Dans le premier cas, la contribution est qualifiée de radiative et dans le second de non-radiative. On associe un temps à chacune de ces contributions, appelés respectivement temps de vie radiatif, T_1^R , et temps de vie non-radiatif, T_1^{NR} dont la somme des inverses est égale à l'inverse du temps de vie total, T_1 :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^R} + \frac{1}{T_1^{NR}} \quad (4.39)$$

Le temps de cohérence, T_2 , peut s'interpréter de deux manières différentes. La plus simple est celle qui découle de l'équation (4.14) qui nous indique que la moyenne du moment dipolaire est proportionnelle à la somme des cohérences, σ_{10} et σ_{01} . Or, d'après la définition (4.38) de la matrice de relaxation, les deux termes non-diagonaux relaxent à la même vitesse avec un temps moyen donné par le temps de cohérence, T_2 . La somme des cohérences relaxe donc avec le même temps caractéristique, T_2 . Par conséquent, l'interprétation physique du temps de cohérence est la suivante : le temps de cohérence est le temps d'amortissement de l'oscillation du moment dipolaire moyen lorsque le système, après préparation dans un état déterminé, évolue librement. On montrera, dans la suite, que l'oscillation dipolaire libre, associée à un état préparé à l'instant $t = 0$, s'écrit sous la forme générale suivante :

$$\langle \hat{\mu} \rangle = A_0 e^{-t/T_2} \sin \omega_0 t \quad (4.40)$$

Le dipôle décrit en fonction du temps une oscillation exponentiellement amortie, de pulsation ω_0 , la pulsation propre du système.

La seconde interprétation du temps de cohérence est moins intuitive mais rentre plus dans les concepts de base de la mécanique quantique. Le temps de cohérence T_2 s'interprète comme le temps au bout duquel un système, au départ complètement quantique, adopte un comportement classique. Le passage d'un comportement purement quantique à un comportement classique porte le nom de décohérence. Une des propriétés propres à un système quantique, comme le système à deux niveaux, est la suivante : si deux états sont des états possibles du système, c'est-à-dire solution de l'équation de Schrödinger, par exemple, les états propres $|0\rangle$ et $|1\rangle$, alors toute combinaison linéaire de ces états est également solution de l'équation de Schrödinger : on parle alors de superposition cohérente. Le ket de la formule (4.34) montre la solution générale du problème à deux niveaux sous la forme d'une superposition cohérente. La matrice densité, définie par la formule (4.20), est complètement équivalente au ket (4.34).

Un système qui n'est pas isolé de son environnement, après préparation à l'instant $t = 0$, perd sa cohérence au bout d'un temps T_2 . En reprenant les notations de l'équation (4.20), il vient :

$$\rho(0) = \begin{pmatrix} C_1 C_1^* & C_1 C_0^* \\ C_1^* C_0 & C_0 C_0^* \end{pmatrix} \implies \rho(t \gg T_2) = \begin{pmatrix} C_1 C_1^* & 0 \\ 0 & C_0 C_0^* \end{pmatrix} \quad (4.41)$$

Le système perd son caractère cohérent et se transforme en un mélange statistique classique qui ne fait intervenir que les populations. Un tel mélange ne peut donc pas s'écrire sous la forme d'un ket qui, par nature, représente un état cohérent. La décohérence traduit une méconnaissance des interactions que le système à deux niveaux entretient avec son environnement. Des modèles d'interaction entre l'environnement et le système étudié [97] illustrent le passage d'un état parfaitement connu, dont l'évolution donnée par l'équation de Schrödinger est déterministe, à un état moins bien déterminé dont la connaissance n'est que probabiliste.

4.1.6 Équations de Bloch optiques

4.1.6.a Utilisation de la matrice densité et des équations de Bloch optiques

Les éléments de la matrice densité, populations et cohérences sont liés à des moyennes d'observables : l'énergie moyenne du système, d'une part, et le moment dipolaire moyen, d'autre part. Les équations de Bloch optiques, qui décrivent l'évolution temporelle de la matrice densité, nous renseignent donc uniquement sur la valeur moyenne des observables.

Les moyennes en question sont soit des moyennes d'ensemble, soit des moyennes temporelles sur un objet unique. Il faut signaler que l'hypothèse ergodique, c'est-à-dire l'équivalence des deux types de moyennes, est vérifiée uniquement si l'ensemble considéré est composé d'un grand nombre de systèmes à deux niveaux rigoureusement identiques :

même énergie, même temps de vie et même temps de cohérence. Or, dans la pratique, un ensemble de boîtes quantiques n'est jamais homogène : les énergies des différentes boîtes de l'ensemble sont dispersées et les temps de relaxation, T_1 et T_2 , diffèrent d'une boîte à l'autre du fait que toutes les boîtes quantiques ne possèdent pas la même taille, la même forme, le même environnement (contraintes, défauts, charges piégées, etc.).

Les équations de Bloch optiques donnent une bonne description dans les deux cas. Cependant, à cause de l'inhomogénéité des ensembles de boîtes quantiques, les temps caractéristiques de relaxation, T_1 et T_2 , d'un objet unique, doivent être remplacés par des temps de relaxation dits inhomogènes, T_1^* et T_2^* . Le temps de cohérence inhomogène, T_2^* , d'un ensemble de boîtes quantiques, plus court que le temps de cohérence homogène, T_2 , d'une boîte unique, a une origine physique différente du vrai temps de cohérence T_2 . Ce temps T_2^* est rigoureusement un temps de déphasage qui rend compte des interférences destructives entre les oscillations de tous les dipôles de l'ensemble qui se font à des fréquences légèrement différentes les unes par rapport aux autres. Ainsi, même si chaque oscillation dipolaire s'amortit au bout d'un temps caractéristique homogène, T_2 , la somme de toutes ces oscillations s'amortit plus rapidement, au bout d'un temps T_2^* .

Il en va de même pour l'amortissement des oscillations de Rabi. Chaque oscillation de Rabi possède une amplitude et une fréquence de Rabi bien déterminées qui sont différentes d'une boîte à une autre à cause des forces d'oscillateurs et des énergies propres différentes.

4.1.6.b Les trois approximations

Avant d'explicitier les équations de Bloch optiques, il est important de mettre en évidence les trois hypothèses que nous sommes amenés à conjecturer pour aboutir à ces équations. Cela donne le cadre physique dans lequel ces équations semi-classiques sont valables [96].

1) Approche semi-classique.

Dans le formalisme des équations de Bloch optiques, le système à deux niveaux est considéré comme un système quantique alors que le champ électromagnétique appliqué, quant à lui, n'est pas quantifié mais traité classiquement. Formellement, cette approche semi-classique a pour conséquence le fait que les modifications subies par le champ appliqué par le biais de son interaction avec le système à deux niveaux ne sont pas prises en compte. Cette approche n'est donc justifiée que si la modification de l'état du champ, via des processus d'absorption ou d'émission de photons, peut être négligée, c'est-à-dire si le champ est macroscopique : s'il contient un nombre moyen de photons très supérieur à l'unité. Cette approche est valide lorsque le champ appliqué est un champ cohérent issu d'un laser.

A contrario, à la limite où celui-ci est, par exemple, un état de Fock avec peu de photons, ces équations semi-classiques ne sont plus valables. Dans ce dernier cas, nous sommes amenés à résoudre des équations couplées à la fois pour le système à deux niveaux et le champ incident : les équations de Bloch-Maxwell [94, 90].

2) Émission spontanée inchangée par la présence du champ appliqué.

Les éléments de la matrice de relaxation (4.38) sont indépendants de la présence ou non d'un champ électromagnétique appliqué au système à deux niveaux. Cela suppose que l'on puisse négliger les modifications de l'émission spontanée liées à la présence du rayonnement incident. On montre que cette condition est vérifiée, pourvu que la pulsation de Rabi, Ω , à laquelle oscille la population du système, soit très inférieure à la fréquence, ω_0 , de la transition considérée [96]. Cela impose la condition supplémentaire suivante :

$$\Omega \ll \omega_0 \quad (4.42)$$

3) Excitation quasi-résonnante.

La condition de quasi-résonance, encore appelée approximation séculaire, ou approximation du référentiel tournant, est l'hypothèse la plus importante que l'on suppose pour résoudre les équations de Bloch optiques. Une excitation quasi-résonnante avec la transition optique étudiée est définie par le fait que le désaccord, Δ , appelé couramment *detuning*, entre la fréquence de l'onde excitatrice, ω_L , et la fréquence propre de la transition, ω_0 , est très petit devant cette dernière fréquence. Donc, l'inégalité suivante doit être vérifiée :

$$\Delta = |\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0 \quad (4.43)$$

Nous avons déjà utilisé cette hypothèse pour passer du système d'équations différentielles (4.31) à coefficients dépendants du temps, au système (4.32) à coefficients constants. Elle intervient exactement au même endroit lors de la résolution des équations de Bloch optiques. Combinée avec la condition (4.42), l'approximation séculaire consiste à faire la moyenne, dans les équations différentielles, des termes oscillants à la pulsation $2\omega_L$.

On peut donner une interprétation physique à cette approximation séculaire [96]. Elle consiste à ne conserver que les processus physiques élémentaires qui conservent l'énergie, que voici : excitation du système à deux niveaux, i.e. passage de l'état fondamental $|0\rangle$ au premier état excité $|1\rangle$, par absorption d'un photon laser résonnant ou quasi-résonnant ; désexcitation du système à deux niveaux par émission stimulée d'un photon. Les deux

autres processus élémentaires, qui ne conservent pas l'énergie, sont négligés dans cette approximation. Ils sont les suivants : excitation du système avec émission d'un photon et désexcitation du système avec absorption d'un photon. Ces processus peuvent être considérés comme virtuels, intervenant au moins au deuxième ordre dans un développement perturbatif de telle manière que l'état initial et l'état final du système aient la même énergie. Or, les deux processus conservant l'énergie sont du premier ordre.

4.1.6.c Énoncé des équations

En suivant l'exemple de la référence [96], nous présentons les équations de Bloch optiques qui décrivent l'interaction d'un système à deux niveaux avec une onde électromagnétique. Ce système d'équations différentielles prend en compte de manière phénoménologique les processus de décohérence par l'ajout de termes de relaxation de la population et de la cohérence. Nous considérons une onde électromagnétique de la forme générale suivante, en tenant explicitement compte de la phase, ϕ , qui joue un rôle important lorsque l'excitation est constituée de deux impulsions :

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \mathcal{E} \left(\frac{t}{\tau} \right) \cos(\omega_L t + \phi) \quad (4.44)$$

$\mathbf{E}_0$ est un vecteur unitaire. $\mathcal{E} \left(\frac{t}{\tau} \right)$ est une enveloppe qui est constante dans le cas d'une onde plane progressive ou une fonction en cloche de type sécante hyperbolique dans le cas d'une impulsion brève de durée τ . Un déphasage à l'origine ϕ apparaît dans la porteuse de telle manière à prendre en compte les situations dans lesquelles il ne peut pas être pris nul. Dans le chapitre suivant, nous verrons un tel cas où un système à deux niveaux interagit successivement avec deux impulsions lumineuses dont la différence de phase est précisément ϕ . Par la suite, nous posons :

$$\Omega(t) = -\frac{\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_0}{\hbar} \mathcal{E} \left(\frac{t}{\tau} \right) \quad (4.45)$$

Cette formule généralise la définition (4.25) de la pulsation de Rabi au cas où l'amplitude du champ électrique n'est pas constante. Dans ce dernier cas, la pulsation de Rabi dépend explicitement du temps, ce qui brise la monochromaticité de l'oscillation de Rabi. Ce résultat sera rigoureusement démontré dans la section 4.3.

En explicitant l'équation (4.36), nous obtenons les quatre équations différentielles cou-

plées suivantes :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = i \Omega(t) \cos(\omega_L t + \phi) \{\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)\} - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = -i \omega_0 \sigma_{10}(t) + i \Omega(t) \cos(\omega_L t + \phi) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{10}(t)}{T_2} \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = i \omega_0 \sigma_{01}(t) - i \Omega(t) \cos(\omega_L t + \phi) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{01}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (4.46)$$

En négligeant les processus non résonants, il est possible de simplifier les équations (4.46) en se plaçant dans l'approximation du référentiel tournant. En combinant l'approximation précédente et le changement de variables suivant :

$$\hat{\sigma}_{10}(t) = \sigma_{10}(t) e^{i(\omega_L t + \phi)} \quad (4.47)$$

$$\hat{\sigma}_{01}(t) = \sigma_{01}(t) e^{-i(\omega_L t + \phi)} \quad (4.48)$$

il est possible d'éliminer la porteuse $\cos(\omega_L t + \phi)$ dans les équations (4.46), ce qui permet d'obtenir les équation différentielles, dites équations de Bloch optiques, suivantes :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = \frac{i}{2} \Omega(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = i \Delta \hat{\sigma}_{10}(t) + \frac{i}{2} \Omega(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -i \Delta \hat{\sigma}_{01}(t) - \frac{i}{2} \Omega(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (4.49)$$

où $\Delta = \omega_L - \omega_0$ est le *detuning*.

En fonction de la forme prise par la pulsation de Rabi, $\Omega(t)$, les équations de Bloch optiques (4.46) permettent de décrire l'évolution temporelle d'un système à deux niveaux couplé à un champ monochromatique ou à une impulsion. Dans la suite du chapitre, nous présentons les résultats théoriques dans ces deux régimes d'excitation. Les résultats expérimentaux ont été obtenus uniquement en régime d'excitation impulsionnelle.

4.2 Excitation continue

Dans cette section, nous généralisons les résultats obtenus, en section 4.1.3.a, pour un système à deux niveaux isolé, au cas d'un système en interaction avec son environnement. Il est donc caractérisé par un temps de vie, T_1 , et un temps de cohérence, T_2 . Nous montrerons également que le spectre de la luminescence provenant d'un objet unique en interaction avec une onde monochromatique n'est pas trivial et ne peut pas s'obtenir directement à partir des équations de Bloch optiques.

4.2.1 Solutions des équations de Bloch optiques

La résolution des équations (4.14), avec une pulsation de Rabi constante, définie par l'expression (4.25), donne, lorsque le système est initialement dans son état fondamental, l'expression suivante pour la population du niveau excité σ_{11} :

$$\sigma_{11} = \sigma_{11}^S \left[1 - e^{-\gamma t} \left(\cos \Omega_C t + \frac{\gamma}{\Omega_C} \sin \Omega_C t \right) \right] \quad (4.50)$$

L'amplitude de cette oscillation, σ_{11}^S , est la solution stationnaire des équations de Bloch dont l'expression est la suivante :

$$\sigma_{11}^S = \frac{1}{2} - \frac{1}{2 + 2\Omega^2 T_1 T_2} \quad (4.51)$$

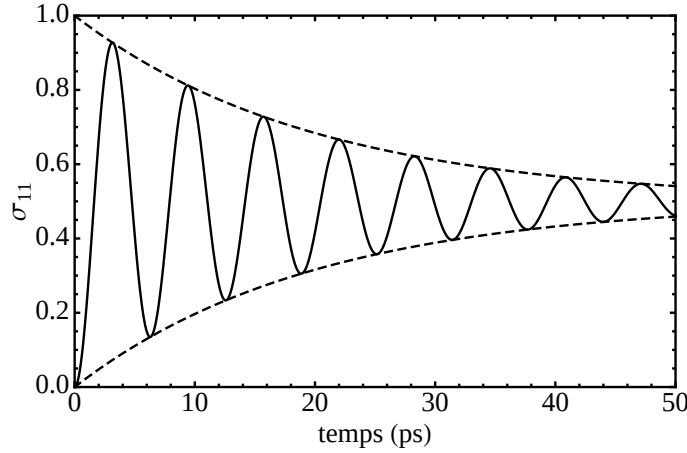


FIGURE 4.3 : Simulation d'oscillations de Rabi amorties : populations du niveau excité (trait plein) en fonction du temps. Nous avons choisi $T_1 = T_2 = 80$ ps et $\Omega = 1$ rad/s.

La figure (4.3) représente la fonction (4.50). Elle montre que la population décrit une oscillation de Rabi amortie exponentiellement. Le taux d'amortissement, γ , dépendant à la fois de T_1 et de T_2 , est donné par l'expression ci-dessous :

$$\gamma = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \quad (4.52)$$

La pulsation de Rabi, Ω_C , à laquelle la population oscille est légèrement différente de la pulsation Ω intervenant dans les équations de Bloch optiques :

$$\Omega_C = \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)^2} \quad (4.53)$$

Dans la section suivante, nous considérons le cas d'un émetteur unique excité de manière continue. Nous montrons pourquoi, dans ce cas, les équations de Bloch optiques ne peuvent pas décrire l'évolution du système.

4.2.2 Fluorescence de résonance d'un émetteur unique

Ce qui caractérise la luminescence émise par un système à deux niveaux unique, excité de manière continue, est son spectre constitué de trois pics (voir figure (4.5b)) : un pic central centré sur la fréquence d'excitation, ω_L et deux pics latéraux centrés sur les fréquences $\omega_L \pm \Omega$. Ce spectre porte le nom de triplet de Mollow [98, 99, 100, 101, 25]. Nous n'allons pas faire la démonstration rigoureuse de l'obtention de ce triplet, mais en donner quelques idées physiques importantes.

Il est crucial de remarquer que la configuration expérimentale, consistant à exciter un objet unique de manière continue, ne permet ni de réaliser une moyenne d'ensemble, puisque l'objet étudiée est une boîte quantique unique, ni une moyenne temporelle sur cette boîte unique puisque à aucun moment l'expérience est répétée, contrairement au cas d'une excitation impulsionnelle, envisagé ci-dessus, qui permet la répétition de quelques 80 millions d'expériences identiques en une seconde. Par conséquent, les équations de Bloch, qui décrivent seulement l'évolution de grandeurs moyennes, ne décrivent pas cette configuration expérimentale et ne permettent pas d'interpréter les résultats. En effet, la transformée de Fourier de l'oscillation de Rabi présentée sur la figure (4.3) ne donne pas le triplet de Mollow. Cela provient du fait que les fluctuations du moment dipolaire unique doivent être prise en compte, ce que les équations de Bloch ne font pas. En réalité, l'image physique la mieux appropriée de l'évolution de la population du niveau excité n'est pas la courbe "moyenne", montrée sur la figure (4.3). Il faut plutôt imaginer une oscillation dipolaire non amortie mais discontinue, qui retombe à zéro brutalement, en moyenne après un temps T_2 , puis oscille à nouveau, et ainsi de suite tant que l'interaction reste branchée, comme le montre la figure (4.4).

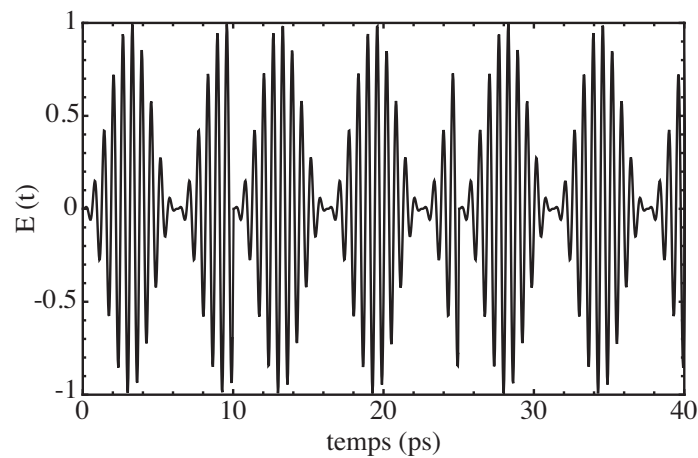


FIGURE 4.4 : Représentation de l'oscillation dipolaire fluctuante d'une boîte quantique unique excitée à la résonance, en continu. Les temps où se produisent les discontinuités (10 ps et 25 ps) sont choisis arbitrairement.

L'enveloppe du champ électrique émis par le dipôle est une fonction sinusoïdale qui oscille à la fréquence de Rabi. La courbe présente deux discontinuités, aux temps $t = 10$ ps et $t = 25$ ps, dues à des processus de décohérence, par exemple, des processus d'émission spontanée. La fréquence d'oscillation de la porteuse doit évidemment être égale à la fréquence de la lumière, ce qui n'est pas le cas sur cette courbe, par souci de visibilité.

D'après le champ électrique montré sur la figure (4.4), on peut se convaincre que la fonction d'autocorrélation, $\langle E(t).E(t+\tau) \rangle$, du champ émis par la boîte quantique unique est donnée par la formule suivante :

$$\langle E(t).E(t+\tau) \rangle = (1 - \cos \Omega \tau) \sin \omega_L \tau e^{-\tau/T_2} \quad (4.54)$$

La représentation graphique de cette fonction est montré sur la figure (4.5a). La fonction d'autocorrélation oscille à la fréquence de la lumière et possède une enveloppe sinusoïdale oscillant à la fréquence de Rabi, amortie exponentiellement. Le temps caractéristique de l'amortissement est le temps de cohérence du dipôle, T_2 .

Par définition [94], la densité spectrale est obtenue en prenant la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation du champ électrique. On obtient le triplet, montré sur la figure (4.5b), où le pic central est bien à l'énergie des photons du laser et les deux pics latéraux décalés d'une énergie égale à $\pm \hbar \Omega$ du pic central. Le calcul rigoureux, effectué dans la référence [94], de la densité spectrale nécessite de quantifier le champ électromagnétique.

Il existe une seconde manière d'obtenir le triplet de Mollow par la méthode de l'atome habillé [96]. Cette méthode nécessite aussi de quantifier le champ électromagnétique. Elle consiste à diagonaliser de manière exacte le Hamiltonien, $\hat{H}$ du système complet, constitué par le système à deux niveaux, le champ électromagnétique quantifié et l'interaction matière-lumière. Cet hamiltonien s'écrit donc :

$$\hat{H} = \hat{H}_{BQ} + \hat{H}_{EM} + \hat{H}_{int} \quad (4.55)$$

où $\hat{H}_{BQ}$ est le hamiltonien de la boîte quantique, $\hat{H}_{EM}$, le hamiltonien du champ électromagnétique quantifié, et $\hat{H}_{int}$, le hamiltonien d'interaction. Sur la figure (4.6), sont représentés, à la fois, les états propres du hamiltonien $\hat{H}_0 = \hat{H}_{BQ} + \hat{H}_{EM}$, sous la forme |état de la boîte, état du champ> où N est le nombre de photons du champ, et les états propres du hamiltonien total $\hat{H}$.

On peut montrer qu'il y a quatre transitions optiques possibles entre les quatre états habillés, dont deux sont dégénérées. Le spectre contient donc les trois fréquences suivantes : ω_L , $\omega_L \pm \Omega$.

Le triplet de Mollow a souvent été observé en régime d'excitation continue ; signalons

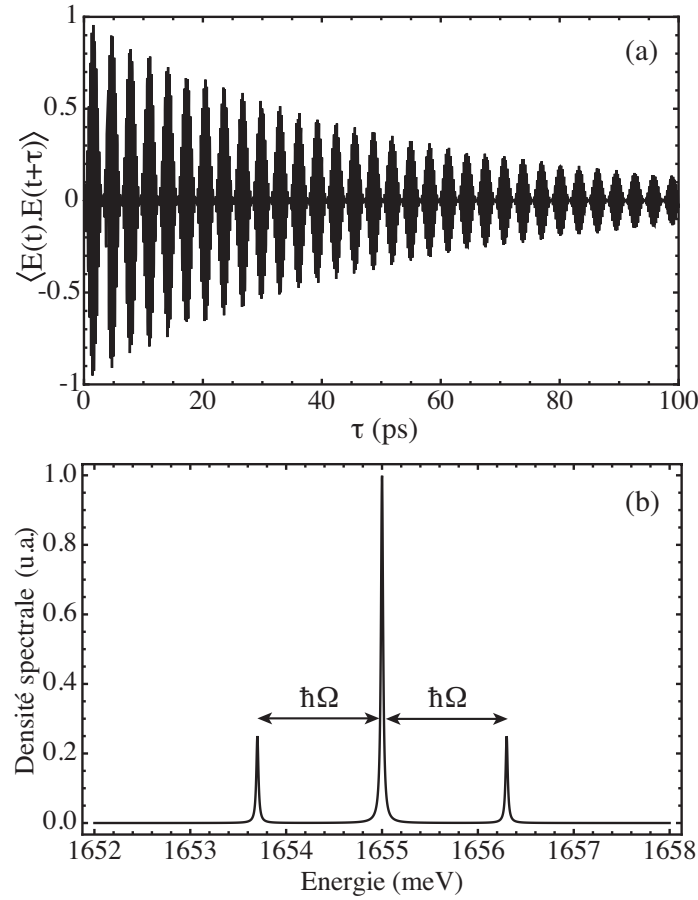


FIGURE 4.5 : (a) Fonction d'autocorrélation du champ électrique émis par une boîte quantique unique, de temps de cohérence de 50 ps, excitée par un laser continu, (b) Spectre correspondant : triplet de Mollow.

que, récemment, il a également été observé en régime d'excitation impulsionnelle [102, 103]. La suite du chapitre est consacrée à l'étude du couplage fort en régime impulsionnel.

4.3 Excitation impulsionnelle

4.3.1 Lien entre les oscillations de Rabi en fonction du temps et de la puissance

4.3.1.a Résolution de l'équation de Schrödinger en régime d'excitation pulsée

Le but de cette section est de connaître l'état du système à deux niveaux pendant son interaction avec une impulsion laser. Mathématiquement, nous écrivons la norme du champ électrique de l'impulsion, $E_1(t)$, comme le produit d'une enveloppe sécante

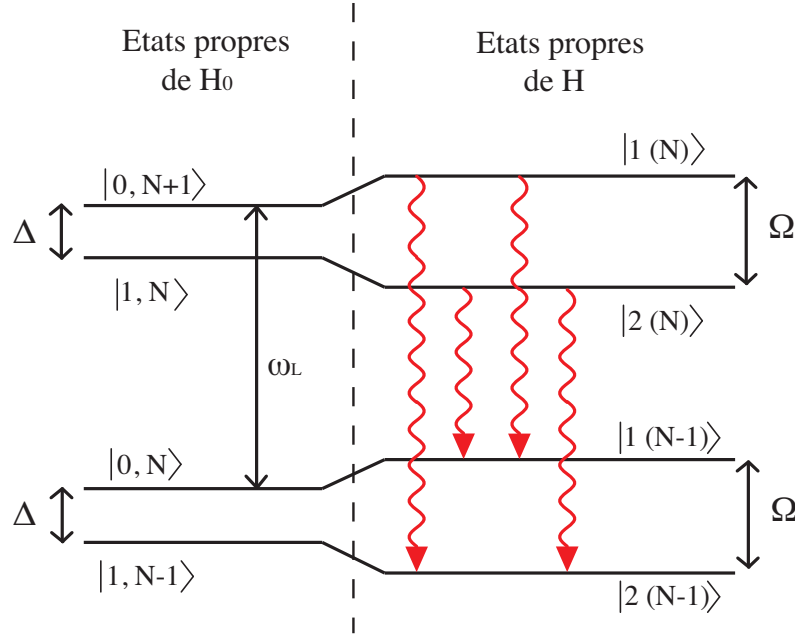


FIGURE 4.6 : Schéma représentant, à gauche, les états propres du hamiltonien $\hat{H}_0$, dans lequel l'interaction entre la lumière et le système à deux niveaux n'est pas incluse, et à droite, les états habillés, états propres du hamiltonien total $\hat{H}$. Les transitions permises par émission spontanée entre états habillés sont indiquées par les flèches rouges.

hyperbolique de largeur τ et d'une porteuse oscillant à la pulsation ω_L :

$$\mathbf{E}_1(t) = \mathcal{E}_1 \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau}\right) \cos(\omega_L t) \quad (4.56)$$

Nous notons le champ $E_1(t)$ avec un indice pour indiquer qu'il s'agit d'une impulsion. Dans le cinquième chapitre, nous étudierons l'interaction du système avec deux impulsions successives que nous noterons $E_1(t)$ et $E_2(t)$.

Afin de résoudre ce problème, nous sommes amenés à faire les deux hypothèses suivantes.

Interaction quasi-instantanée avec l'impulsion

L'hypothèse d'interaction quasi-instantanée du système à deux niveaux avec l'impulsion lumineuse signifie qu'on se place dans une situation expérimentale telle que la durée de l'interaction avec l'impulsion laser, τ , est beaucoup plus petite que les autres temps caractéristiques des interactions du système avec tout son environnement.

Mathématiquement, cela signifie que :

$$\tau \ll \min(T_1, T_2) \quad (4.57)$$

Concrètement, cette hypothèse permet de négliger tout processus de relaxation pendant la durée τ de l'interaction dans les équations de Bloch optiques. Nous verrons que cette hypothèse est justifiée par l'expérience, étant donné que typiquement les valeurs des constantes T_1 et T_2 sont de l'ordre de quelques 100 ps alors que $\tau = 1$ ps.

Cette hypothèse permet de trouver les solutions des équations de Bloch en conservant la forme réelle des impulsions, par exemple des fonctions sécantes hyperboliques, contrairement à la solution de Torrey [104], où le prix à payer pour garder les termes de relaxation, est de considérer des impulsions en créneaux.

Interaction strictement résonnante (*detuning* nul)

Les équations de Bloch optiques sont obtenues en faisant l'hypothèse que la fréquence du laser ω_L est proche de celle de la transition ω_0 : $|\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0$. Elles sont valables si le *detuning* est petit devant ω_0 .

Or, la configuration expérimentale consistant à insérer les boîtes quantiques dans un guide d'onde présente l'intérêt de permettre la détection de la luminescence quand bien même l'excitation est résonnante. Toutes les expériences de contrôle cohérent sont menées strictement à la résonance, c'est pourquoi tous les termes proportionnels au *detuning* dans les équations de Bloch sont éliminés.

La précision sur la valeur du *detuning* est limitée à 50 μeV qui est la résolution spectrale du spectromètre. Dans la section 5.7, nous verrons que ce *detuning* résiduel incontrôlable ne remet pas en question l'interprétation des résultats présentés ci-dessous.

Le fait de négliger la décohérence pendant l'interaction avec l'impulsion nous permet d'utiliser le formalisme des fonctions d'onde et l'équation de Schrödinger. Il suffit de reprendre les étapes de la section 4.1.3.a dans laquelle nous avons résolu l'équation de Schrödinger du système à deux niveaux isolé de son environnement et couplé à une onde plane monochromatique, en remplaçant cette dernière par une impulsion. Le couplage W_t s'écrit donc de la manière suivante :

$$W_t = \Omega_1(t) \cos \omega_0 t \quad (4.58)$$

où la pulsation de Rabi dépendante du temps, $\Omega_1(t)$, s'écrit :

$$\Omega_1(t) = -\frac{\mu}{\hbar} \mathcal{E}_1 \operatorname{sech} \left(\frac{t}{\tau} \right) \quad (4.59)$$

Il faut donc résoudre un système d'équations différentielles couplées similaire au système (4.32). La différence provient du fait que les coefficients dépendent du temps, via le

facteur $\Omega_1(t)$. Le système s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{\alpha}(t) = i \frac{\Omega_1(t)}{2} \beta(t) \\ \dot{\beta}(t) = i \frac{\Omega_1(t)}{2} \alpha(t) \end{cases} \quad (4.60)$$

On peut vérifier que dans le cas où le système est initialement dans l'état fondamental, c'est-à-dire que $\alpha(0) = 1$ et $\beta(0) = 0$, la solution est la suivante :

$$\begin{cases} \alpha(t) = \cos\left(\frac{\theta_1(t)}{2}\right) \\ \beta(t) = i \sin\left(\frac{\theta_1(t)}{2}\right) \end{cases} \quad (4.61)$$

où l'aire partielle de l'impulsion, $\theta_1(t)$, est définie par :

$$\theta_1(t) = \int_{-\infty}^t \Omega_1(t') dt' \quad (4.62)$$

L'aire totale de l'impulsion, θ_1 , est définie par l'égalité suivante : $\theta_1 = \theta_1(+\infty)$.

L'évolution temporelle du système pendant l'interaction est donc donnée, d'après (4.29), par la fonction d'onde suivante :

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_0 t/\hbar} \cos\left(\frac{\theta_1(t)}{2}\right) |0\rangle + i e^{-iE_1 t/\hbar} \sin\left(\frac{\theta_1(t)}{2}\right) |1\rangle \quad (4.63)$$

Par conséquent, juste après l'impulsion au temps $t = \tau$, le système est préparé dans la superposition cohérente suivante, paramétrisée par l'aire totale, θ_1 , de l'impulsion,

$$|\psi(\theta_1)\rangle = e^{-iE_0 \tau/\hbar} \cos\left(\frac{\theta_1}{2}\right) |0\rangle + i e^{-iE_1 \tau/\hbar} \sin\left(\frac{\theta_1}{2}\right) |1\rangle \quad (4.64)$$

Nous serons amenés à manipuler souvent les états préparés par des impulsions d'aire $\pi/2$, π et 2π . Ces états sont nommés d'après les impulsions qui les ont créés. On parle d'état $\pi/2$, π et 2π dont les fonctions d'onde sont les suivantes :

Etat $\pi/2$:

$$|\psi\left(\theta_1 = \frac{\pi}{2}\right)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{-iE_0 \tau/\hbar} |0\rangle + i e^{-iE_1 \tau/\hbar} |1\rangle) \quad (4.65)$$

Etat π :

$$|\psi(\theta_1 = \pi)\rangle = i e^{-iE_1 \tau/\hbar} |1\rangle \quad (4.66)$$

Etat 2π :

$$|\psi(\theta_1 = 2\pi)\rangle = -e^{-iE_0\tau/\hbar}|0\rangle \quad (4.67)$$

Par ailleurs, il est utile de calculer exactement l'évolution de la population du niveau excité pendant l'interaction ; c'est l'objet de la section suivante.

4.3.1.b Évolution de la population sous une impulsion sécante hyperbolique

En négligeant tout processus de relaxation pendant l'interaction entre la boîte quantique et l'impulsion lumineuse, ce qui se justifie par le fait que $\tau \ll \min(T_1, T_2)$, il est possible de donner une expression analytique de l'évolution de la population de l'état excité $\sigma_{11}(t)$. La résolution des équations de Bloch optiques nous permet d'écrire pendant la durée τ de l'interaction :

$$\sigma_{11}(t) = \sin^2 \left(\frac{\theta_1(t)}{2} \right) \quad (4.68)$$

La résolution de l'intégrale définissant $\theta_1(t)$ donne l'expression suivante :

$$\begin{aligned} \theta_1(t) &= \frac{\mu\mathcal{E}_1}{\hbar} \int_{-\infty}^t \operatorname{sech} \left(\frac{t'}{\tau} \right) dt' \\ &= \frac{\mu\mathcal{E}_1}{\hbar} \times \frac{\tau}{2} \left(\pi + 4 \arctan \left(\tanh \left(\frac{t}{2\tau} \right) \right) \right) \\ &= \frac{\theta_1}{2\pi} \left(\pi + 4 \arctan \left(\tanh \left(\frac{t}{2\tau} \right) \right) \right) \end{aligned} \quad (4.69)$$

où nous avons calculé l'intégrale définissant θ_1 :

$$\theta_1 = \theta_1(+\infty) = \frac{\mu\mathcal{E}_1}{\hbar} \pi \tau \quad (4.70)$$

Si bien que pendant l'impulsion paramétrisée par son aire θ_1 , l'évolution de la population en fonction du temps avec θ_1 comme paramètre est donnée par l'expression suivante :

$$\sigma_{11}(t; \theta_1) = \sin^2 \left[\frac{\theta_1}{4\pi} \left(\pi + 4 \arctan \left(\tanh \left(\frac{t}{2\tau} \right) \right) \right) \right] \quad (4.71)$$

Donnons les expressions plus simples dans les cas particuliers suivants : $\theta_1 = \pi$ et $\theta_1 = 2\pi$.

Pour $\theta_1 = \pi$, il vient :

$$\sigma_{11}(t; \theta_1 = \pi) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh \left(\frac{t}{\tau} \right) \quad (4.72)$$

Pour $\theta_1 = 2\pi$,

$$\sigma_{11}(t; \theta_1 = 2\pi) = \operatorname{sech}^2 \left(\frac{t}{\tau} \right) \quad (4.73)$$

Sur la figure (4.7), trois exemples d'oscillations de Rabi en régime impulsien sont donnés pour des aires d'impulsion égales à π , 2π et 11π . Pour ces simulations, la durée

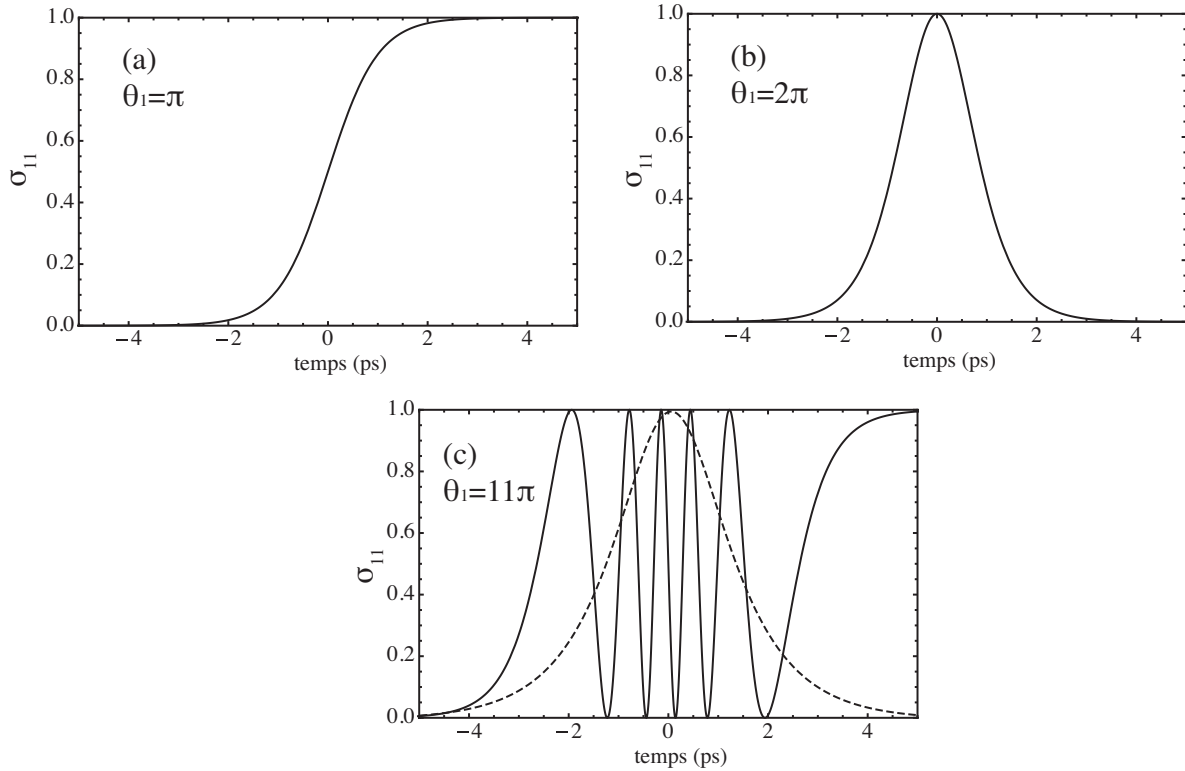


FIGURE 4.7 : Exemples d'oscillations de Rabi en régime impulsionnel avec une impulsion d'aire (a) $\theta_1 = \pi$, (b) $\theta_1 = 2\pi$ et (c) $\theta_1 = 11\pi$. En pointillés, sur la figure (c), est représentée l'impulsion laser normalisée.

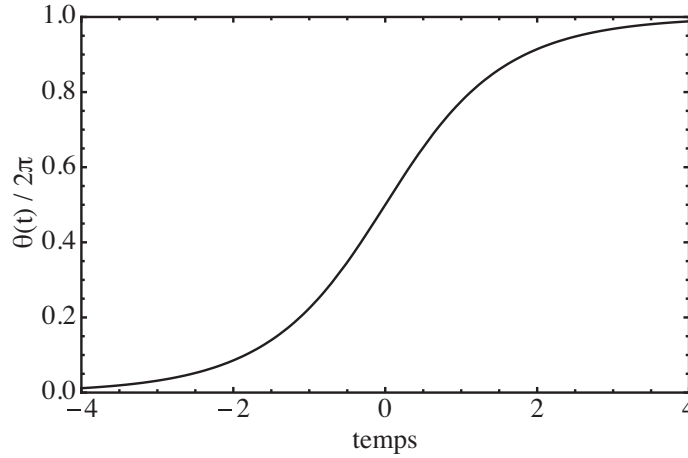
de l'impulsion est de 1 ps. Nous remarquons deux choses : premièrement, l'oscillation de Rabi n'est évidemment pas périodique. En effet, sur la figure (c), pour laquelle l'aire θ_1 vaut 11π , on observe que la fréquence instantanée de l'oscillation est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique au même instant. La pulsation de Rabi, $\Omega_1(t)$, démarre de 0 aux temps négatifs, atteint sa valeur maximale au temps $t = 0$ correspondant au maximum de l'impulsion puis diminue jusqu'à 0 après l'impulsion. La notion de fréquence instantanée n'a de sens que dans le cas où la population σ_{11} oscille un grand nombre de fois.

Dans ce dernier cas, nous pouvons considérer que la fonction $\theta_1(t)$ représentée sur la figure (4.8) possède un comportement linéaire sur une période. La linéarisation de cette fonction autour d'une valeur t_0 permet de démontrer ce résultat. En effet, le développement de Taylor, au premier ordre, autour de t_0 donne :

$$\theta_1(t) = \theta_1(t_0) + \left(\frac{d\theta_1(t)}{dt} \right)_{t_0} (t - t_0) \quad (4.74)$$

Le calcul de la dérivée aboutit finalement à l'expression ci-dessous :

$$\theta_1(t) = \theta_1(t_0) - \frac{\mu\mathcal{E}_1}{\hbar} \operatorname{sech} \left(\frac{t_0}{\tau} \right) t_0 + \frac{\mu\mathcal{E}_1}{\hbar} \operatorname{sech} \left(\frac{t_0}{\tau} \right) t \quad (4.75)$$

FIGURE 4.8 : Fonction $\theta(t)$ normalisée.

Dans cette expression, le préfacteur de t constitue la pulsation instantanée, $\Omega_1(t_0)$, dont l'expression est la suivante :

$$\Omega_1(t_0) = \frac{\mu \mathcal{E}_1}{\hbar} \operatorname{sech} \left(\frac{t_0}{\tau} \right) \quad (4.76)$$

Deuxièmement, l'intervalle de temps sur lequel la population oscille dépend de la valeur de l'aire de l'impulsion, θ_1 , et ne coïncide pas avec la largeur temporelle de l'impulsion. Plus l'aire est grande et plus la variation de la population σ_{11} s'effectue sur un intervalle long.

4.3.1.c Oscillations de Rabi en fonction de l'aire de l'impulsion

Le régime d'excitation impulsionnelle permet de préparer expérimentalement le système quantique dans un état qui est paramétrisé par l'aire de l'impulsion. En effet, le système subit une oscillation de Rabi uniquement pendant la durée de l'interaction avec l'impulsion. Nous venons de remarquer que la durée d'interaction, pendant laquelle la population du niveau excité, σ_{11} , oscille vraiment dépend de l'aire de l'impulsion. Or, dans la pratique, cette aire ne dépasse jamais quelques unités de π radians. Dans ce cas la durée de l'interaction est bien approximée par la durée, τ , de l'impulsion. Dans le cas où il est possible de négliger la relaxation pendant l'interaction, la formule (4.71) et les figures (4.7) décrivent l'oscillation de la population excitée sous l'impulsion.

Après l'interaction, le système reste dans l'état dans lequel l'impulsion laser l'a préparé puis, à cause du couplage du système aux degrés de liberté de son environnement, cet état relaxe vers l'état fondamental, la relaxation de la population se faisant après un temps moyen T_1 et celle de l'oscillation dipolaire après un temps moyen T_2 . Les simulations (a-f) de la figure (4.9) représentent l'évolution temporelle de la population du niveau excité,

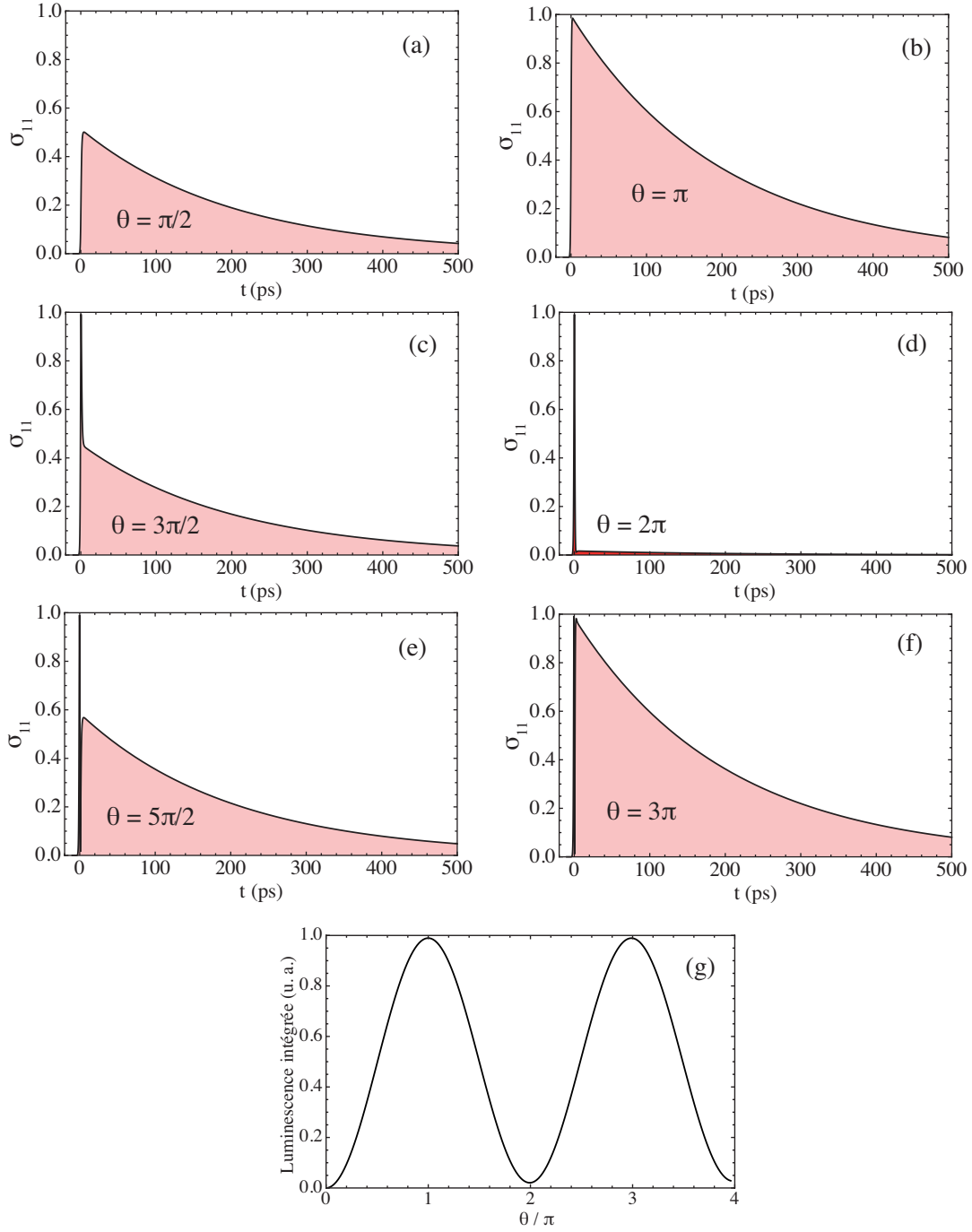


FIGURE 4.9 : Simulations représentant la population du niveau excité en fonction du temps (traits pleins noirs) pour des impulsions d'aires $\pi/2$ (courbe a), π (courbe b), $3\pi/2$ (courbe c), 2π (courbe d), $5\pi/2$ (courbe e), 3π (courbe f). Sur la figure (g), la luminescence intégrée, proportionnelle aux aires rouges des figures (a-e), est reportée en fonction de l'aire de l'impulsion.

σ_{11} , lorsque le système, initialement dans son état fondamental, est excité au temps $t = 0$ par une impulsion de durée τ de 1 ps et d'aire variant de $\pi/2$ à 3π .

L'interprétation physique des oscillations de Rabi est basée sur la compétition des phénomènes d'absorption et d'émission stimulée par le laser. Pour des impulsions d'aires inférieures à π , le processus dominant est l'absorption : plus le nombre de photons d'excitation augmente, plus la probabilité d'exciter le système augmente, l'inversion de population étant atteinte de manière déterministe pour une impulsion d'aire égale à π .

Pour des impulsions d'aire totale comprise entre π et 2π , la première partie de l'impulsion, d'aire égale à π rad, inverse la population du système et l'aire restante contribue à stimuler l'émission d'un photon par recombinaison radiative de la paire électron-trou. Ce raisonnement découpant une impulsion en zones successives d'aires égales à π se généralise pour toute aire totale d'impulsion.

Néanmoins, aussi intuitif soit le raisonnement précédent, il n'est pas à prendre au pied de la lettre. En effet, la courbe (g) traduit bien le déterminisme de la mécanique quantique et non pas une simple probabilité classique dans le sens où chaque aire d'impulsion engendre un état quantique parfaitement déterminé : c'est une superposition cohérente et non pas un mélange statistique classique.

Les courbes expérimentales correspondant aux simulations (a-f) pourraient être obtenues avec une *streak camera*. En fait, deux limitations entravent l'acquisition de la totalité des spectres résolus en temps. Premièrement, la résolution intrinsèque de la *streak camera* étant de 5 ps, il lui est impossible de résoudre l'oscillation de Rabi temporelle se déroulant au voisinage du temps $t = 0$, étant donné qu'elle se produit sur un intervalle de temps inférieur à la résolution de la camera. Deuxièmement, lorsque la puissance incidente dépasse quelques dizaines de μW , l'intensité de la lumière provenant du laser domine complètement l'intensité de la luminescence au voisinage de $t = 0$ et masque l'oscillation de Rabi temporelle. En revanche, la décroissance exponentielle qui a lieu après l'interaction avec l'impulsion et de durée caractéristique, T_1 , de quelques centaines de picosecondes peut être mesurée.

Etant donné que nous ne pouvons pas résoudre temporellement les oscillations de Rabi, nous allons étudier la luminescence intégrée d'une boîte quantique qui oscille en fonction de l'aire de l'impulsion θ_1 . Ce type de spectre s'obtient avec un spectromètre suivi d'une caméra CCD. La hauteur du pic de luminescence intégrée est proportionnel à l'intégrale du spectre résolu en temps. Si l'aire, en rouge sur la figure (4.9), sous chacune des courbes (a-f) est reportée en fonction de l'aire θ de l'impulsion incidente, on obtient la courbe (g). Cette courbe, qui représente une oscillation de l'intensité en fonction de l'aire θ des impulsions est couramment appelée oscillation de Rabi. Dans la situation expérimentale où le temps de décroissance est beaucoup plus long que le temps d'interaction avec l'impulsion, l'oscillation de Rabi en fonction de θ est périodique est très peu amortie. En effet, d'après la section 4.3.1.a, la luminescence intégrée est proportionnelle à l'intégrale

suivante :

$$\begin{aligned}
 L(\theta) &\propto \sigma_{11}(0^+) \int_0^{+\infty} e^{-t/T_1} dt \\
 &\propto \sigma_{11}(0^+) T_1 \\
 &\propto T_1 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)
 \end{aligned} \tag{4.77}$$

La simulation (g) montre quelques écarts par rapport à la formule (4.77). Ces écarts proviennent de la durée finie de l'interaction avec l'impulsion excitatrice. Par exemple, la luminescence intégrée obtenue pour une impulsion 2π ne s'annule pas totalement. Ce fait s'explique par deux raisons. D'une part, pendant la durée de l'interaction, des processus d'émission spontanée peuvent avoir lieu et contribuer à la luminescence. D'autre part, en observant la simulation (d), on se rend compte que la population σ_{11} ne tombe pas exactement à zéro après l'interaction avec l'impulsion 2π . Ceci est dû à la présence de décohérence pendant l'interaction qui réduit quelque peu l'effet de l'émission stimulée. L'aire résiduelle sous cette courbe contribue aussi à la valeur non nulle de la luminescence intégrée.

4.4 Résultats expérimentaux

Les résultats présentés dans cette section ont été obtenus sur les échantillons de boîtes quantiques de GaAs (type A) et sur les échantillons de boîtes quantiques auto-assemblées d'InAs (type B).

4.4.1 Échantillon A

4.4.1.a Oscillations de Rabi

La figure (4.10) représente une oscillation de Rabi en fonction de l'aire des impulsions obtenue en excitant à la résonance une boîte quantique unique de fluctuations d'interface. Chaque point expérimental correspond à l'intensité, intégrée sur une seconde, de la luminescence mesurée par une caméra CCD.

La figure (4.11) montre les trois spectres de luminescence correspondant à des aires d'impulsions de π , 2π et 3π . Pour cette expérience, la luminescence était totalement polarisée selon l'axe y qui est l'axe commun de la polarisation linéaire de l'excitation et d'un état propre de la boîte quantique. Le spectre π a deux contributions : un pic fin de largeur inférieure à la résolution du système de détection, qui est de $50 \mu\text{eV}$ et un fond de largeur $500 \mu\text{eV}$. Le pic fin correspond à la luminescence de la boîte quantique alors que le fond large est dû au laser diffusé. On observe que la luminescence a quasiment disparu sur le

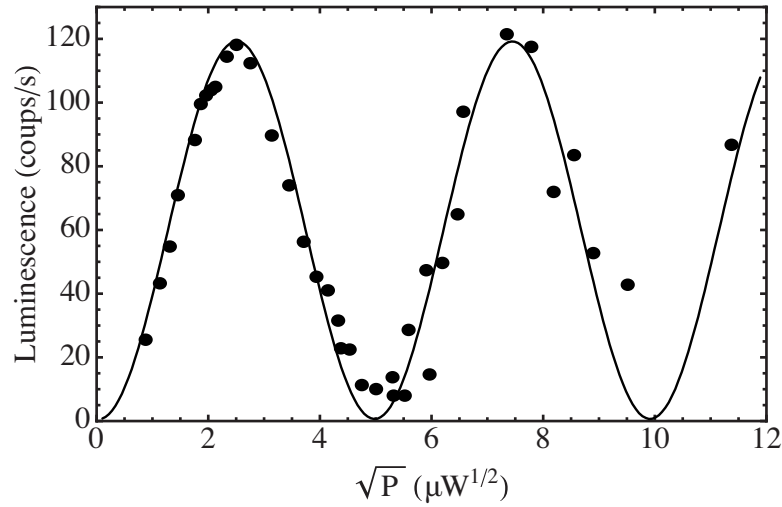


FIGURE 4.10 : Oscillations de Rabi avec excitation résonnante : luminescence intégrée d'une boîte quantique (points noirs) en fonction de la racine carrée de la puissance incidente, proportionnelle à l'aire de l'impulsion. L'ajustement numérique (trait plein) utilise les équations de Bloch optiques (4.49).

spectre 2π alors que le fond augmente de manière linéaire avec la puissance d'excitation. Enfin, le spectre 3π est de nouveau composé de deux contributions. A cette puissance d'excitation de $60 \mu\text{W}$, la hauteur du fond devient comparable à la hauteur du pic de luminescence, ce qui explique la difficulté expérimentale d'observer les oscillations de Rabi sur un grand nombre de périodes. Jusqu'à aujourd'hui, la qualité des guides d'onde, la qualité du couplage entre le mode gaussien du laser et le mode guidé et la faible efficacité de collection de la luminescence ne nous permettent pas d'observer des oscillations au-delà de trois périodes.

L'obtention d'une courbe d'oscillations de Rabi telle que celle de la figure (4.10) est la première étape indispensable dans une expérience de contrôle cohérent. En effet, nous allons utiliser les courbes d'oscillations de Rabi en tant qu'étalon, afin de relier de manière univoque la puissance incidente à l'état préparé par l'impulsion. Nous reviendrons sur cette exploitation dans le cinquième chapitre consacré au contrôle cohérent. Une exploitation plus directe de ces oscillations permet de calculer le moment dipolaire, μ , de la transition fondamentale d'une boîte quantique.

4.4.1.b Calcul du moment dipolaire de la transition fondamentale

Il est possible de remonter au moment dipolaire μ de la transition étudiée à partir de la période des oscillations de Rabi montrée sur la figure (4.10). Pour trouver l'expression littérale de μ , nous calculons l'énergie $\mathcal{E}$ d'une impulsion lumineuse se propageant dans le

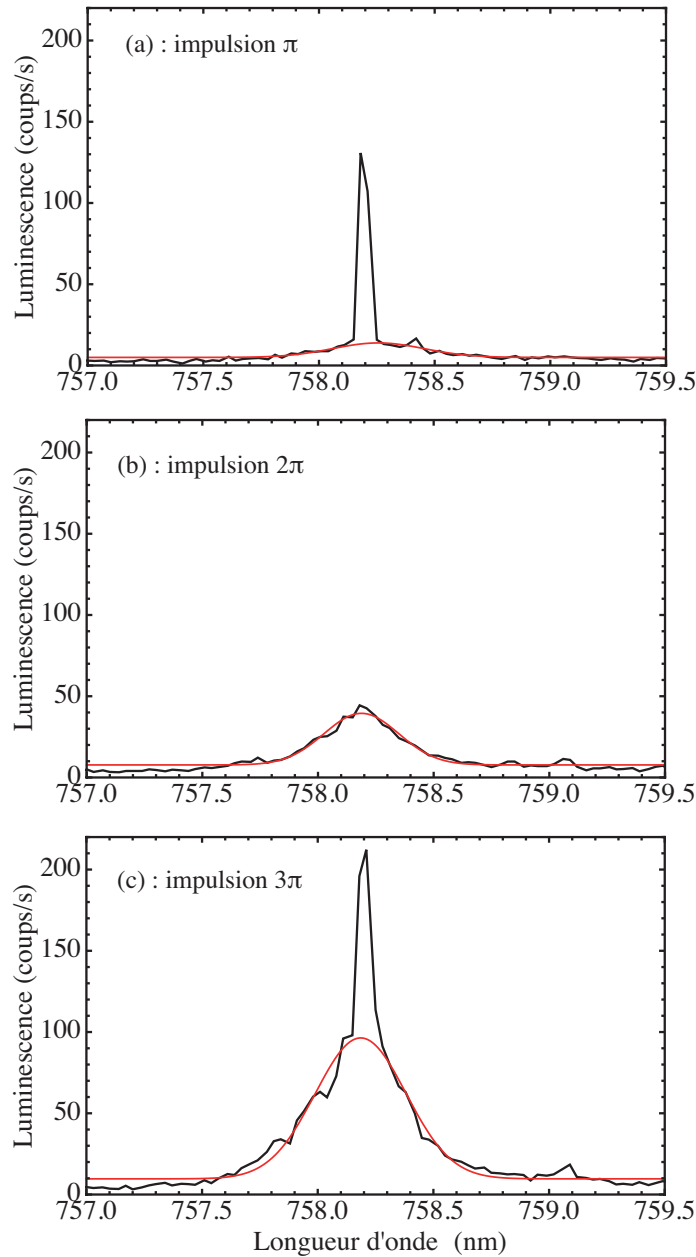


FIGURE 4.11 : Spectre de luminescence d'une boîte quantique sous excitation résonnante. (a) Puissance incidente, égale à $5 \mu\text{W}$, correspondant à une impulsion π . (b) Puissance incidente, égale à $25 \mu\text{W}$, correspondant à une impulsion 2π . (c) Puissance incidente, égale à $60 \mu\text{W}$, correspondant à une impulsion 3π . Sur la figure (4.10), ce spectre représente le premier maximum des oscillations.

guide d'onde de deux manières différentes en utilisant, premièrement, la densité d'énergie électromagnétique dans le guide d'onde au niveau de la boîte quantique, et deuxièmement, la puissance lumineuse moyenne mesurée par un puissance-mètre en amont du guide d'onde.

Pour simplifier, nous considérons une impulsion électromagnétique de formes temporelle et spatiale carrées. On écrit le champ électrique $\mathbf{E}_G(x, y, t)$ dans le guide d'onde de la manière suivante, en le supposant colinéaire avec le moment dipolaire μ :

$$\mathbf{E}_G(x, y, t) = \mathbf{E}_0 \chi\left(\frac{x}{x_0}, \frac{y}{y_0}\right) \chi\left(\frac{t}{\tau}\right) \cos \omega t \quad (4.78)$$

où $\chi\left(\frac{x}{x_0}\right)$ est une fonction porte de largeur x_0 et $\mathbf{E}_0$ un vecteur constant dont la norme est égale à l'amplitude du champ électrique dans l'impulsion. L'énergie $\mathcal{E}_G$ d'une impulsion dans le guide d'onde est donnée par :

$$\mathcal{E}_G = \iiint_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\epsilon E_G^2}{2} + \frac{B_G^2}{2\mu} \right) \times dx dy \times \frac{c}{n} dt \quad (4.79)$$

où $\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_r$, et n l'indice de réfraction effectif du guide. Dans le cas d'une impulsion se propageant à la vitesse c/n dans la direction z , nous faisons le changement de variable suivant : $dz = \frac{c}{n} dt$.

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_G &= \iiint_{-\infty}^{+\infty} \epsilon E_G^2 \times dx dy \times \frac{c}{n} dt \\ &= \iiint_{-\infty}^{+\infty} \epsilon E_0 \chi\left(\frac{x}{x_0}, \frac{y}{y_0}\right) \chi\left(\frac{t}{\tau}\right) \cos^2 \omega t \times \frac{c}{n} dx dy dt \\ &= \frac{1}{2} \frac{c}{n} \epsilon S E_0 \tau \end{aligned} \quad (4.80)$$

où S , la section transversale du guide, vaut $S = x_0 y_0 = 0.36 \mu m^2$. La quantité $\frac{c}{n} \tau \times S$ correspond au volume occupé par l'impulsion dans le guide à temps fixé.

Par ailleurs, l'énergie d'une impulsion dans le guide s'écrit, en fonction de la puissance moyenne P_m incidente, de la manière suivante :

$$\mathcal{E}_G = P_m T \eta \quad (4.81)$$

où T est l'inverse du taux de répétition du laser modelocké, c'est-à-dire le temps entre deux impulsions délivrées par le laser, η un facteur inférieur à l'unité lié aux pertes dues au couplage imparfait entre le laser et le mode guidé. On définit le facteur η par le rapport des énergies de l'impulsion dans le guide, $\mathcal{E}_G$, et avant le guide, $\mathcal{E}_A$:

$$\eta = \frac{\mathcal{E}_G}{\mathcal{E}_A} \quad (4.82)$$

Expérimentalement, $\mathcal{E}_G$ est mesurée à la sortie du guide d'onde en tenant compte du facteur de transmission à l'interface GaAs-air. Les mesures de transmission permettent d'encadrer le facteur de pertes η :

$$\eta \in [5.10^{-3}, 5.10^{-2}] \quad (4.83)$$

En égalant les expressions (4.80) et (4.81), l'expression de l'amplitude du champ électrique E_0 ressenti par la boîte quantique est trouvée :

$$E_0 = \sqrt{\frac{2P_m T n}{\epsilon S c \tau}} \eta \quad (4.84)$$

D'après la définition de l'aire θ d'une impulsion, il vient pour l'expression du moment dipolaire μ :

$$\mu = \frac{\theta_1 \hbar}{\int_{-\infty}^{+\infty} E_0 \chi\left(\frac{t}{\tau}\right) dt} = \frac{\theta_1 \hbar}{E_0 \tau} \quad (4.85)$$

Tant et si bien que, en remplaçant E_0 par son l'expression donnée par l'équation (4.84), on trouve :

$$\mu = \theta_1 \hbar \sqrt{\frac{\epsilon S c}{2P_m T \tau n \eta}} \quad (4.86)$$

En se reportant à la courbe d'oscillations de Rabi (4.10), on trouve que $\theta_1 = \pi$ est obtenue pour la puissance moyenne incidente suivante : $P_m = 5 \mu\text{W}$. Ce couple de valeurs particulières inséré dans l'équation (4.86) et l'encadrement de η (4.83) permet d'encadrer la valeur expérimentale du moment dipolaire μ :

$$\mu \in [50D, 180D] \quad (4.87)$$

Un résultat similaire a déjà été reporté [26] sur le même type de boîtes quantiques où un moment dipolaire de 75 D a été mesuré. Par ailleurs, ce résultat est compatible avec le calcul théorique du moment dipolaire dans ce type de boîte quantique [106].

4.4.2 Échantillon B

Les oscillations de Rabi obtenues sur les échantillons de type B peuvent être classées en deux catégories. En premier lieu, nous présentons des résultats où la luminescence des boîtes et l'excitation résonnante sont co-polarisées. En second lieu, nous verrons que la luminescence de certaines boîtes quantiques contient, en plus de la composante co-polarisée avec l'excitation, une composante polarisée orthogonalement à l'excitation. La présence de cette composante nous amène à remettre en cause l'orientation selon les axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ des états propres polarisés linéairement des paires électron-trou dans une boîte ne présentant pas de symétrie de révolution.

4.4.2.a Oscillations de Rabi

Dans cette section, nous présentons des résultats provenant d'une part des échantillons B avec des guides d'onde droits et d'autre part avec des guides d'onde inclinés par rapport aux plans cristallographiques.

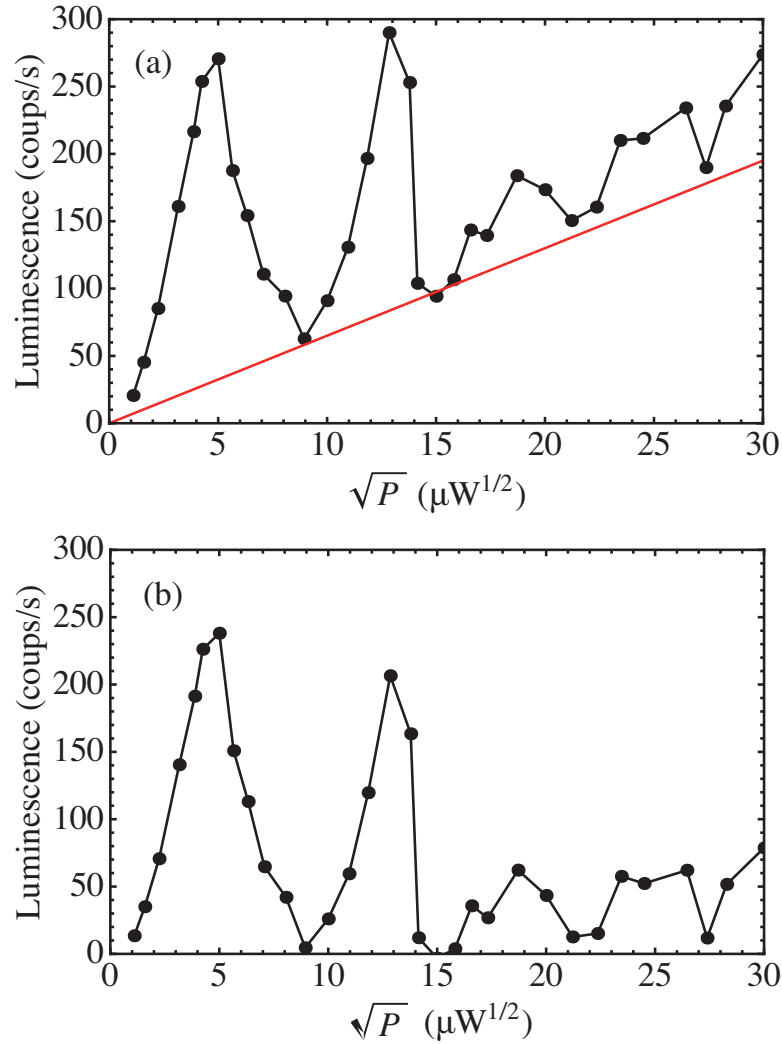


FIGURE 4.12 : (a) Oscillations de Rabi obtenues sur un boîte insérée dans un guide droit. (b) Oscillations de Rabi après soustraction du fond linéaire avec l'aire de l'impulsion (droite rouge sur la figure (a)).

La figure (4.12a) montre une oscillation de Rabi typique d'une boîte quantique placée dans un guide d'onde droit. A la courbe d'oscillations, se rajoute un fond dont l'intensité croît linéairement avec l'aire de l'impulsion. Nous avons attribué ce fond aux réflexions sur les deux interfaces aux extrémités du guide d'onde subies par l'impulsion se propageant à l'intérieur du guide. La soustraction de ce fond conduit aux oscillations présentées sur la figure (4.12b).

Afin de supprimer la partie guidée de la lumière réfléchie, les guides d'onde ont été incliné d'un angle de 7° par rapport aux guides d'onde droits. Sur les courbes d'oscillations de Rabi provenant de boîtes quantiques insérées dans de tels guides, dont un exemple est présenté sur la figure (4.13), le fond a complètement disparu.

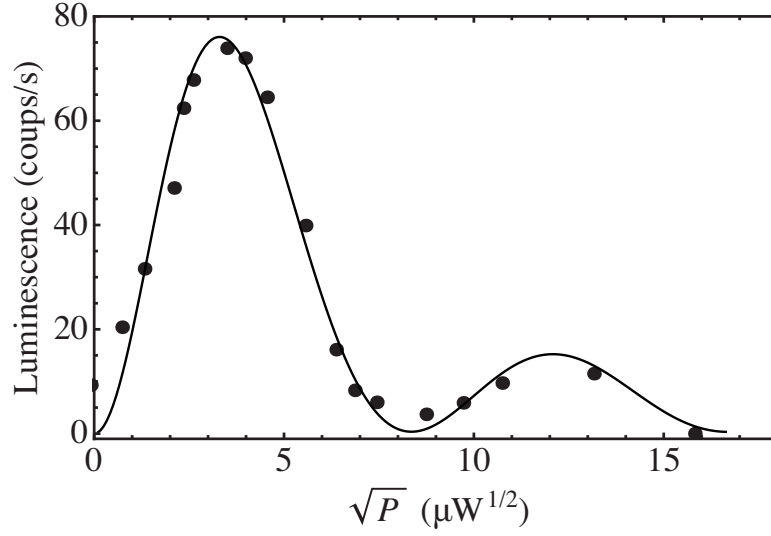


FIGURE 4.13 : Oscillations de Rabi obtenues sur une boîte insérée dans un guide incliné. L'ajustement numérique (ligne continue) tient compte d'un terme de perte de population dépendant de la puissance d'excitation.

Une déviation par rapport au modèle du système à deux niveaux provient de l'amortissement des oscillations de Rabi avec l'augmentation de la puissance d'excitation. Il est possible d'ajuster les points expérimentaux de manière phénoménologique en ajoutant, dans les équations de Bloch, un terme de fuite de population proportionnel à l'aire θ_1 de l'impulsion. L'ajustement des données de la figure (4.13) provient de la résolution numérique des équations suivantes :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = \frac{i}{2}\Omega_1(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} - \alpha\theta_1 \sigma_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = \frac{i}{2}\Omega_1(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_1(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (4.88)$$

Le terme $(-\alpha\theta_1 \sigma_{11}(t))$ dans la première équation est responsable de l'amortissement avec la puissance d'excitation des oscillations de Rabi. Le facteur α est une constante permettant d'ajuster les points expérimentaux.

Plusieurs groupes ont observé ce type d'amortissement [107, 27, 23, 108, 109, 110, 111] en le justifiant principalement par un accroissement du taux de déphasage avec l'augmentation de la puissance incidente, mécanisme appelé déphasage induit par l'excitation (*EID*, pour "*excitation-induced-dephasing*"). Ce phénomène entraîne plutôt un amortissement des oscillations de Rabi symétrique par rapport à l'intensité moyenne, c'est-à-dire que

le signal de luminescence tend vers une valeur moyenne non nulle. Pour expliquer un amortissement qui fait tendre la population du niveau excité vers 0, il est nécessaire d'introduire une fuite de population proportionnelle à l'aire de l'impulsion. Des mécanismes du type effet Auger peuvent être invoqués [112]. Des mesures résonnantes de temps de vie, en fonction de la puissance d'excitation, pourraient confirmer cette hypothèse, le temps de vie devant être plus court lors d'une excitation avec une impulsion 3π qu'avec une impulsion π . Ces mesures sur des boîtes d'InAs ne sont pas possibles avec notre *streak camera*.

4.4.2.b Oscillations de Rabi et laser contra-polarisés

Certaines boîtes quantiques excitées à la résonance émettent, de manière inattendue, à la fois de la luminescence polarisée verticalement et horizontalement. La figure (4.14) présente l'intensité de la luminescence dans les deux polarisations orthogonales en fonction de l'aire de l'impulsion pour deux boîtes différentes.

Ces courbes présentent les mêmes caractéristiques principales. Premièrement, les fréquences des oscillations ne sont pas les mêmes dans les deux polarisations. L'intensité de la polarisation verticale croît, en fonction de l'aire de l'impulsion, plus rapidement que celle de la polarisation horizontale. Deuxièmement, les oscillations semblent s'amortir et l'intensité de la luminescence ne s'annule jamais pour toute aire d'impulsion non nulle.

Dans la suite, nous donnons quelques pistes expliquant ces courbes. L'hypothèse la plus simple consiste à supposer que les états propres d'une paire électron-trou sont polarisés linéairement dans des directions inclinées par rapport aux axes cristallographiques. Cette hypothèse a été vérifiée expérimentalement dans la référence [82] et également justifiée théoriquement [51]. Dans ce cas, l'excitation laser est couplée aux deux états propres, ce qui explique les composantes verticale et horizontale de la luminescence. Pour vérifier cette hypothèse, nous avons récemment inséré un interféromètre de Fabry-Pérot sur la trajectoire de la luminescence afin de résoudre le *splitting* d'échange δ_1 et de déterminer la polarisation des deux composantes de la luminescence. Cette étude est actuellement en cours et n'a pu être réalisée sur les boîtes quantiques dont la luminescence est reportée sur la figure (4.14). Dans le paragraphe suivant, nous présentons un résultat préliminaire.

Mesure d'un *splitting* d'échange

Pour mesurer le *splitting* δ_1 de la transition fondamentale d'une boîte quantique, on l'excite de manière non résonnante. Pour chaque position du polariseur de détection, un balayage en énergie de la cavité Fabry-Pérot est effectué, d'amplitude totale $50 \mu\text{eV}$ autour de l'énergie de la transition. Les deux positions du polariseur, pour lesquelles une seule

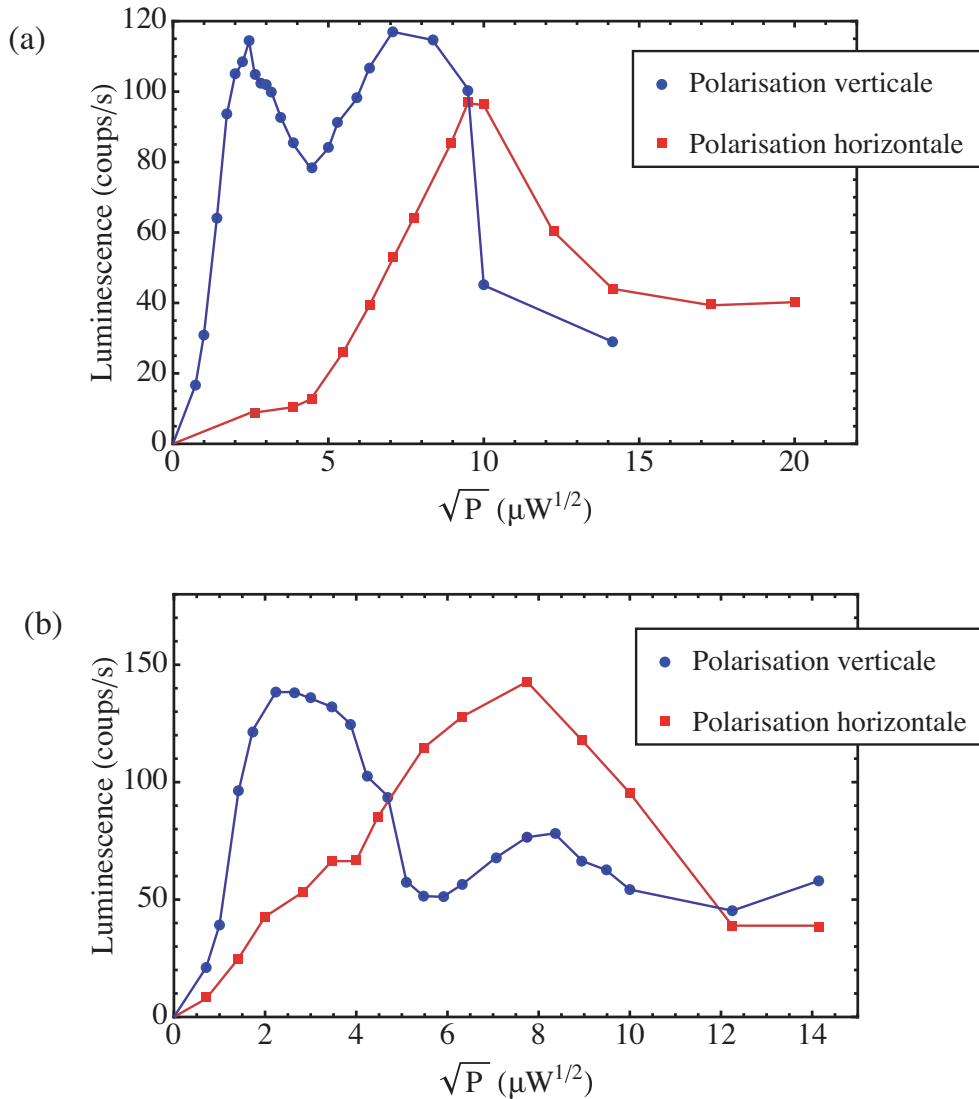


FIGURE 4.14 : Deux exemples d'oscillations de Rabi en fonction de l'aire des impulsions dépendant de la polarisation, sur des boîtes différentes.

des deux composantes de la luminescence polarisées orthogonalement l'une par rapport à l'autre est détectée, correspondent aux deux orientations des états propres de la paire électron-trou.

La figure (4.15) montre ce que nous obtenons pour les deux polarisations croisées qui ne laissent passer qu'une seule des deux composantes du doublet. Le *splitting* mesuré est de $18 \mu\text{eV}$.

Dans le cas particulier présenté sur cette figure, les axes propres de polarisation sont inclinés de 45° par rapport aux axes X et Y. Cette expérience préliminaire prouve l'hypothèse d'inclinaison des états propres par rapport aux axes cristallographiques, due aux contraintes.

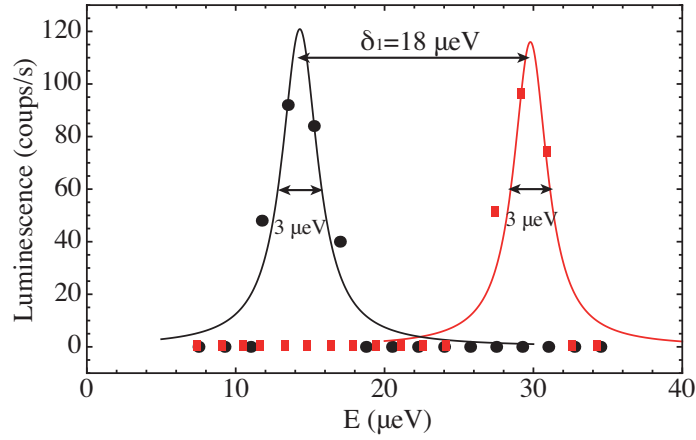


FIGURE 4.15 : *splitting* X-Y. Les directions de polarisation des deux raies de luminescence sont inclinées de 45° par rapport aux axes X et Y. En traits pleins, l'ajustement numérique par des lorentziennes donne une valeur de *splitting* de $18 \mu\text{eV}$.

Pour tenir compte de cette inclinaison, nous devons résoudre l'équation de Schrödinger d'un système à trois niveaux. Nous suivons la même procédure que dans la section 4.1.3.a pour établir les équations d'évolution du système à trois niveaux.

Système physique

Le système à trois niveaux est schématisé sur la figure (4.16). Les états propres du système, $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, s'écrivent dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle\}$ comme suit :

$$\begin{cases} |\tilde{X}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{-i\phi_0} | +1\rangle + e^{i\phi_0} | -1\rangle) \\ |\tilde{Y}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (e^{-i\phi_0} | +1\rangle - e^{i\phi_0} | -1\rangle) \end{cases} \quad (4.89)$$

où ϕ_0 est l'angle entre l'axe X et l'axe $\tilde{X}$.

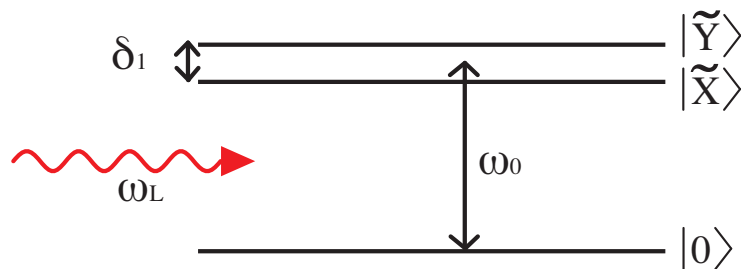


FIGURE 4.16 : Schéma du système à trois niveaux.

L'état du système, $|\Psi(t)\rangle$, à l'instant t , s'écrit comme suit :

$$|\Psi(t)\rangle = C_0|0\rangle + C_{\tilde{X}}|\tilde{X}\rangle + C_{\tilde{Y}}|\tilde{Y}\rangle \quad (4.90)$$

Le hamiltonien, $\hat{H}$, du système à trois niveaux en interaction avec la lumière contient un terme d'évolution libre, $\hat{H}_0$, et un terme d'interaction, $\hat{H}_{int}$, ce qui conduit à :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \quad (4.91)$$

où le hamiltonien libre s'écrit, par définition des énergies propres E_0 , $E_{\tilde{X}}$ et $E_{\tilde{Y}}$, sous la forme suivante :

$$\hat{H}_0 = E_0|0\rangle\langle 0| + E_{\tilde{X}}|\tilde{X}\rangle\langle \tilde{X}| + E_{\tilde{Y}}|\tilde{Y}\rangle\langle \tilde{Y}| \quad (4.92)$$

et le hamiltonien d'interaction :

$$\hat{H}_{int} = W_{\tilde{X}} \left(|0\rangle\langle \tilde{X}| + |\tilde{X}\rangle\langle 0| \right) + W_{\tilde{Y}} \left(|0\rangle\langle \tilde{Y}| + |\tilde{Y}\rangle\langle 0| \right) \quad (4.93)$$

Dans l'approximation dipolaire électrique et l'approximation des grandes longueurs d'onde, les couplages $W_{\tilde{X}(\tilde{Y})}$ s'écrivent :

$$W_{\tilde{X}(\tilde{Y})} = -\hbar\Omega_{\tilde{X}(\tilde{Y})} \cos \omega_L t \quad (4.94)$$

Ces éléments de matrice font intervenir les pulsations de Rabi, $\Omega_{\tilde{X}(\tilde{Y})}$, définies comme suit :

$$\Omega_{\tilde{X}(\tilde{Y})} = \frac{\mu_{\tilde{X}(\tilde{Y})}\mathcal{E}}{\hbar} \quad (4.95)$$

où $\mathcal{E}$ est l'amplitude constante du champ électrique appliqué. En développant les fonctions propres (4.89) sur les fonctions de Bloch [42], nous trouvons que les termes de couplage $\mu_{\tilde{X}}$ et $\mu_{\tilde{Y}}$ s'écrivent ainsi :

$$\begin{cases} \mu_{\tilde{X}} = \mu \cos \phi_0 \\ \mu_{\tilde{Y}} = -\mu \sin \phi_0 \end{cases} \quad (4.96)$$

Evolution temporelle

L'évolution temporelle est calculée en injectant le ket donné par l'expression (4.34) dans l'équation de Schrödinger suivante :

$$i \hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \left(\hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \right) |\psi(t)\rangle \quad (4.97)$$

Nous obtenons une équation sur les coefficients $C_{\tilde{X}}$ et $C_{\tilde{Y}}$ qui est la suivante :

$$\begin{aligned} i \hbar \left(\dot{C}_0|0\rangle + \dot{C}_{\tilde{X}}|\tilde{X}\rangle + \dot{C}_{\tilde{Y}}|\tilde{Y}\rangle \right) &= E_0 C_0|0\rangle + E_{\tilde{X}} C_{\tilde{X}}|\tilde{X}\rangle + E_{\tilde{Y}} C_{\tilde{X}}|\tilde{Y}\rangle \\ &+ W_{\tilde{X}} \left(C_0|\tilde{X}\rangle + C_{\tilde{X}}|0\rangle \right) + W_{\tilde{Y}} \left(C_0|\tilde{Y}\rangle + C_{\tilde{Y}}|0\rangle \right) \end{aligned} \quad (4.98)$$

Après identification des termes en facteurs des kets $|0\rangle$, $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, nous obtenons le système d'équation différentielles couplées à coefficients dépendant du temps suivant :

$$\begin{cases} i \hbar \dot{C}_0(t) = E_0 C_0(t) + W_{\tilde{X}} C_{\tilde{X}}(t) + W_{\tilde{Y}} C_{\tilde{Y}}(t) \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{X}}(t) = E_{\tilde{X}} C_{\tilde{X}}(t) + W_{\tilde{X}} C_0(t) \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{Y}}(t) = E_{\tilde{Y}} C_{\tilde{Y}}(t) + W_{\tilde{Y}} C_0(t) \end{cases} \quad (4.99)$$

Les signaux de luminescence intégrée analysée dans les directions X, I_X , et Y, I_Y , sont donnés par les équations suivantes :

$$\begin{cases} I_X = \int_{-\infty}^{+\infty} |\langle \Psi(t) | \hat{P}_X | 0 \rangle|^2 dt \\ I_Y = \int_{-\infty}^{+\infty} |\langle \Psi(t) | \hat{P}_Y | 0 \rangle|^2 dt \end{cases} \quad (4.100)$$

Les solutions (4.100) sont représentées sur la figure (4.17).

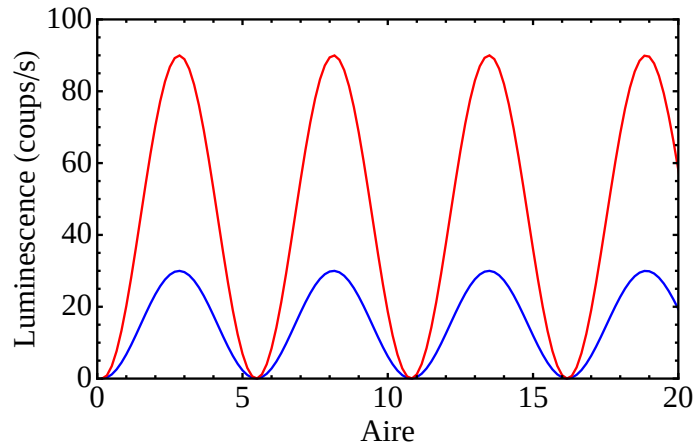


FIGURE 4.17 : Solution du système (4.99) où les états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ sont inclinés d'un angle de 30° par rapport aux axes X et Y. La luminescence analysée selon Y(X) est représentée par la courbe rouge (bleue).

Nous remarquons que l'inclinaison des axes propres des boîtes quantiques peut expliquer une différence d'amplitude entre les oscillations de Rabi analysées dans les deux polarisations X et Y. Néanmoins, ni l'amortissement, ni la différence des fréquences d'oscillations n'apparaissent sur les courbes expérimentales présentées sur la figure (4.14). En effet, les deux oscillations analysées dans les directions X et Y possèdent la même fréquence effective.

Nous avons essayé de tenir compte d'un mélange de trous lourds et légers [113, 114, 115] rendant les états propres légèrement elliptiques. Cette hypothèse ne fait que modifier légèrement les amplitudes des oscillations de Rabi présentées sur la figure (4.17) et ne permet donc pas d'expliquer les données expérimentales.

Enfin, un couplage direct entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ ne permet pas non plus d'obtenir deux fréquences différentes pour les oscillations analysées dans les deux directions orthogonales.

Nous avons atteint le régime de couplage fort entre des boîtes quantiques individuelles et une excitation laser impulsionnelle résonnante avec la transition fondamentale de la boîte. L'observation en micro-photoluminescence des oscillations de Rabi, qui résultent de ce couplage fort, est limitée à forte puissance d'excitation par la diffusion du laser dans la direction de détection de la luminescence. Cette limitation expérimentale, qui empêche l'observation de plus de trois périodes de Rabi, peut être dépassée en continuant d'améliorer l'efficacité d'extraction de la luminescence en développant les pistes évoquées dans le deuxième chapitre.

Les résultats expérimentaux nous ont montré également des limites du modèle à deux niveaux appliqué aux boîtes quantiques. En effet, nous avons observé des comportements qui ne peuvent être décrits par ce seul modèle : d'une part, un amortissement des oscillations de Rabi quand la puissance d'excitation augmente, et, d'autre part, des oscillations de fréquences différentes en fonction de la direction de l'analyseur de détection. Ce dernier point n'est toujours pas compris et reste un sujet d'étude.

Dans le chapitre suivant, nous utilisons les résultats obtenus sur les oscillations de Rabi, pour manipuler l'état d'une boîte quantique par le biais de deux impulsions successives dont l'intensité et la différence de phase sont contrôlées précisément par l'expérimentateur.

Chapitre 5

Contrôle cohérent

Sommaire

5.1	Objectif d'une expérience de contrôle cohérent	142
5.1.1	Manipulation d'un état	142
5.1.2	Mesure des constantes de relaxation	143
5.2	Décohérence : lien entre représentation en kets et matrice densité	143
5.3	Interaction du système à 2 niveaux avec 2 impulsions successives	146
5.3.1	Définitions	146
5.3.2	Dynamique du système	147
5.4	Mesure du temps de cohérence	154
5.4.1	Principe de la mesure	154
5.4.2	Résultats expérimentaux	157
5.5	Mesure du temps de vie	163
5.5.1	Principe de la mesure	163
5.5.2	Résultats expérimentaux	164
5.6	Processus de décohérence	167
5.6.1	Relaxation de l'énergie	167
5.6.2	Déphasage pur	168
5.6.3	Bilan des résultats	169
5.7	Effets du <i>detuning</i>	170
5.7.1	Influence du <i>detuning</i> sur la mesure du temps de cohérence . .	170
5.7.2	Influence du <i>detuning</i> sur la mesure du temps de vie	175

5.1 Objectif d'une expérience de contrôle cohérent

Dans le précédent chapitre, nous avons vu comment il est possible de préparer un système à deux niveaux dans un état quantique particulier en utilisant les oscillations de Rabi. Une expérience de contrôle cohérent consiste à manipuler, avec une seconde impulsion lumineuse, l'état préparé via la première impulsion [31, 116, 117, 118, 119, 120, 121]. Dans ce chapitre, nous expliquerons comment manipuler un état quantique, cette opération constituant le coeur d'un calcul quantique. Ensuite, nous montrerons comment, à partir d'une expérience de contrôle cohérent, il est possible de mesurer les constantes de relaxations du système.

5.1.1 Manipulation d'un état

La réalisation pratique d'un calcul quantique nécessite deux étapes. Premièrement, il faut préparer le système à deux niveaux, support de l'information quantique, dans un état initial contrôlé par l'opérateur. Deuxièmement, l'opération à proprement parler correspond à une manipulation du système par le biais d'une porte logique quantique qui transforme l'état initial du système en un état final déterminé par les lois de la mécanique quantique. Il est possible de réaliser ces deux étapes – préparation et manipulation – par des expériences d'optique tirant profit de l'interaction non-linéaire entre une séquence de deux impulsions lumineuses et un système à deux niveaux adapté : une boîte quantique semi-conductrice par exemple.

L'interaction d'une première impulsion avec une boîte quantique initialement dans l'état vide $|0\rangle$ permet de préparer le système à deux niveaux dans n'importe quelle superposition cohérente, $|\psi\rangle = e^{i\phi} \sin \theta/2 |0\rangle + e^{-i\phi} \cos \theta/2 |1\rangle$, dont les paramètres θ et ϕ sont déterminés par les caractéristiques de l'impulsion, son amplitude, sa phase à l'origine et le *detuning* entre la fréquence des photons et celle de la transition formant le système à deux niveaux. Expérimentalement, il suffit de déterminer la courbe d'oscillations de Rabi en fonction de l'aire de l'impulsion et de s'en servir d'étalon, permettant de relier de manière univoque la puissance laser incidente à la valeur de la population du niveau excité correspondant à l'état initial recherché.

Ensuite, l'état préparé par la première impulsion est transformé par une seconde impulsion, jouant le rôle d'une porte logique quantique, en un état final susceptible d'être à son tour manipulé par une autre porte logique ou d'être lu, donnant ainsi accès au résultat de l'opération.

5.1.2 Mesure des constantes de relaxation

Dans la section précédente, nous avons considéré un système à deux niveaux parfait dont ni l'énergie, ni la phase ne relaxent via des couplages avec l'environnement de la boîte quantique. Ces couplages, en détruisant la cohérence de l'état préparé, sont néfastes au calcul quantique qui tire précisément son efficacité de la manipulation de superpositions cohérentes. Un calcul quantique ne sera donc fiable que si l'ensemble du processus préparation-manipulation-lecture se fait dans un intervalle de temps plus petit que le temps caractéristique de relaxation de la phase T_2 . Il découle de la remarque précédente que la réponse d'un système à deux niveaux soumis à deux impulsions (préparation et manipulation) dépend du délai δ qui s'écoule entre les deux impulsions. En effet, deux régimes sont à distinguer : un pour lequel le laps de temps entre les étapes de préparation et de manipulation est inférieur au temps de cohérence, $\delta < T_2$ et l'autre pour lequel cet intervalle de temps est plus grand que le temps de cohérence, $\delta > T_2$. Dans le premier cas, la seconde impulsion manipule un état cohérent qui peut dans certaines conditions donner lieu à des interférences. Dans le second, l'état manipulé est totalement incohérent : c'est un mélange statistique classique qui ne peut absolument pas donner naissance à un phénomène d'interférence avec la lumière incidente. L'objet de ce chapitre est de montrer que l'étude de la transition du régime pour lequel l'interaction lumière-matière est cohérente vers le régime où elle est incohérente, par le biais d'expériences de contrôle cohérent, permet de remonter au temps caractéristique de relaxation de la phase T_2 et de l'énergie T_1 .

Cette approche est différente de celle présentée dans la section 5.1.1, décrivant la manipulation d'un *qubit* afin de réaliser un calcul quantique. En effet, dans ce dernier cas, l'état sur lequel agit la porte logique doit être connu puisque c'est l'état initial contrôlé par l'expérimentateur. Ici, l'état manipulé n'est pas forcément le même que l'état initial, à cause des éventuels processus de relaxation agissant dans l'intervalle de temps séparant les deux impulsions. Le principe d'une telle expérience est de retrouver l'état dans lequel se trouve le système juste avant son interaction avec la seconde impulsion, connaissant l'état final et les caractéristiques de l'impulsion (intensité, différence de phase ϕ entre les deux impulsions, *detuning* Δ).

5.2 Décohérence : lien entre représentation en kets et matrice densité

De manière à mieux appréhender les mécanismes de décohérence intervenant dans un système à deux niveaux unique, il peut être utile d'en donner une description probabiliste

en terme de kets plutôt qu'une description statistique en terme de matrice densité. Nous allons montrer sur un exemple, directement généralisable, que cette interprétation donne le résultat connu dans le formalisme de la matrice densité.

Considérons le cas d'un mécanisme de décohérence pure, c'est-à-dire une interaction entre le système et son environnement qui ne change pas l'énergie du système mais modifie de manière instantanée la phase relative ϕ de la fonction d'onde. Nous reviendrons en détails sur les processus de déphasage pur dans la section 5.6.2. Le raisonnement est le suivant : dans un premier temps, nous faisons une expérience de pensée pour suivre l'évolution d'un évènement unique. Ce processus unique ne constituant pas une mesure, il faut, dans un second temps, moyenner sur une infinité d'évènements pour trouver l'état du système au sens statistique de la matrice densité.

Soit, à $t = 0$, le système initialement préparé dans l'état suivant :

$$|\psi_0(t=0)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle - i |1\rangle) \quad (5.1)$$

Ensuite à un instant t_i , de l'ordre du temps de cohérence T_2 , le système interagit virtuellement avec des phonons ou des porteurs, provoquant un changement instantané de phase relative de l'état initial $|\psi_0(t_i)\rangle$, celle-ci passant de la valeur initiale $\phi_0 = \frac{\pi}{2}$ à une valeur aléatoire ϕ_1 . En effet, dans l'écriture (5.1), la phase relative est l'argument du facteur devant l'état de base $|1\rangle$, i.e. $\arg(-i) = -\pi/2$. Aussitôt après cette interaction, la fonction d'onde a brutalement changé et s'écrit, jusqu'au processus d'interaction suivant :

$$|\psi_1(t_i)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|0\rangle + e^{i\phi_1} e^{-i\omega_0 t_i} |1\rangle) \quad (5.2)$$

La phase ϕ_n n'est modifiée que pendant les processus d'interactions, elle est donc constante sur les intervalles de temps séparant deux interactions successives. L'indice n dans $|\psi_n(t)\rangle$ et ϕ_n désigne le nombre de processus de déphasage que le système rencontre depuis la préparation initiale de l'état.

Ensuite, pour trouver la matrice densité $\rho(t)$ du système à l'instant t , il nous reste à moyenner sur une infinité d'évènements. Tout d'abord, réécrivons l'état initial du système dans la base $\{|1\rangle, |0\rangle\}$ sous forme d'opérateur densité :

$$\rho(0) = |\psi_0(0)\rangle\langle\psi_0(0)| = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} \\ \frac{i}{2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \quad (5.3)$$

Pour calculer l'état du système au temps t , il faut connaître la probabilité d'apparition d'un processus d'interaction en fonction du temps t écoulé depuis la précédente interaction. D'après la définition du temps de cohérence T_2 , cette probabilité vaut : $1 - e^{-t/T_2}$. De plus, nous supposons que, lors d'un processus de déphasage pur, chaque valeur de la phase ϕ_n

comprise entre 0 et 2π est équiprobable. Ces hypothèses permettent de donner l'expression mathématique de l'opérateur densité au temps t , suivante :

$$\rho(t) = e^{-t/T_2} |\psi_0(t)\rangle\langle\psi_0(t)| + (1 - e^{-t/T_2}) \int_0^{2\pi} \frac{d\phi_1}{2\pi} |\psi_1(t)\rangle\langle\psi_1(t)| \quad (5.4)$$

La formule (5.4) montre que, aux temps courts devant T_2 , la probabilité d'être toujours dans l'état initial est proche de 1 tandis que, aux temps longs, tout état est équiprobable. Dans ce dernier cas, la moyenne sur tous les kets détruit la cohérence du système.

Le calcul de l'intégrale intervenant dans l'expression (5.4) donne en utilisant (5.2),

$$\int_0^{2\pi} \frac{d\phi_1}{2\pi} |\psi_1(t)\rangle\langle\psi_1(t)| = \int_0^{2\pi} \frac{d\phi_1}{2\pi} \frac{1}{2} (|0\rangle\langle 0| + |1\rangle\langle 1| + e^{-i\omega_0 t} e^{i\phi_1} |1\rangle\langle 0| + e^{i\omega_0 t} e^{-i\phi_1} |0\rangle\langle 1|) \quad (5.5)$$

Comme $\int_0^{2\pi} d\phi_1 e^{i\phi_1} = 0$, il reste :

$$\int_0^{2\pi} \frac{d\phi_1}{2\pi} |\psi_1(t)\rangle\langle\psi_1(t)| = \frac{1}{2} |0\rangle\langle 0| + \frac{1}{2} |1\rangle\langle 1| \quad (5.6)$$

Si bien que, d'après l'équation (5.4) :

$$\rho(t) = e^{-t/T_2} |\psi_0(t)\rangle\langle\psi_0(t)| + \frac{1 - e^{-t/T_2}}{2} (|0\rangle\langle 0| + |1\rangle\langle 1|) \quad (5.7)$$

Sous forme matricielle, cet état devient :

$$\begin{aligned} \rho(t) &= e^{-t/T_2} \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} e^{-i\omega_0 t} \\ \frac{i}{2} e^{i\omega_0 t} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} + (1 - e^{-t/T_2}) \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & 0 \\ 0 & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} \frac{1}{2} & -\frac{i}{2} e^{-i\omega_0 t} e^{-t/T_2} \\ \frac{i}{2} e^{i\omega_0 t} e^{-t/T_2} & \frac{1}{2} \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (5.8)$$

Nous remarquons que la décohérence peut s'interpréter comme un changement instantané de phase ϕ . Ce saut brutal est d'autant plus probable que le temps augmente, mais lorsqu'il se produit, toute valeur de phase comprise entre 0 et 2π est équiprobable. La perte de cohérence apparaît plus clairement quand les résultats de plusieurs expériences individuelles sont moyennés, ce qui se produit quand une mesure est effectuée. La distribution aléatoire de la phase aux temps longs brouille "en moyenne" la cohérence de l'état préparé initialement.

5.3 Interaction du système à 2 niveaux avec 2 impulsions successives

Dans cette section, nous étudions la dynamique d'un système à deux niveaux qui interagit, d'une part, avec un train de deux impulsions lumineuses et, d'autre part, avec son environnement. Nous commençons par définir les paramètres contrôlés par l'expérimentateur : l'aire totale, θ , des impulsions et la différence de phase, ϕ , entre les deux impulsions.

5.3.1 Définitions

5.3.1.a Déphasage entre deux impulsions

L'expression "déphasage entre deux impulsions" que nous avons déjà utilisée mérite une définition rigoureuse, étant donné que le paramètre ϕ joue un rôle important dans la suite de ce chapitre.

Soit une première impulsion $\mathbf{E}_1(t)$ dont l'enveloppe est une fonction sécante hyperbolique et la porteuse un cosinus de pulsation ω . L'origine des temps est choisie au maximum de l'impulsion :

$$\mathbf{E}_1(t) = \mathbf{E}_0 \operatorname{sech} \left(\frac{t}{\tau} \right) \cos \omega t \quad (5.9)$$

Et une seconde impulsion $\mathbf{E}_2(t)$ décalée d'un temps D par rapport à la première. Ce décalage temporel est décomposé en deux termes, l'un, δ , grand devant la période de la porteuse, l'autre, ϵ , plus petit que la période :

$$D = \delta + \epsilon \quad (5.10)$$

avec $\delta = nT$ et $0 < \epsilon < T$. On appelle δ le délai entre les deux impulsions ; il sera souvent beaucoup plus grand que la période T de la porteuse. Le terme ϵ permet de définir le déphasage, ϕ , entre les deux impulsions, tel que $\phi = \omega\epsilon$.

Avec ces notations, nous obtenons pour deux impulsions identiques décalées dans le temps :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_2(t) &= \mathbf{E}_1(t - D) \\ &= \mathbf{E}_0 \operatorname{sech} \left(\frac{t - D}{\tau} \right) \cos [\omega(t - D)] \\ &= \mathbf{E}_0 \operatorname{sech} \left(\frac{t - D}{\tau} \right) \cos [\omega t - \omega\epsilon] \end{aligned} \quad (5.11)$$

La quantité $\omega\epsilon$ qui apparaît dans l'argument du cosinus de $\mathbf{E}_2(t)$ est définie comme étant la différence de phase entre les deux impulsions.

En comparant $\mathbf{E}_1(t)$ et $\mathbf{E}_2(t)$, nous remarquons que deux impulsions en phase, telles que $\phi = 0$, sont décalées d'un nombre entier de périodes alors que celles en opposition de phase le sont d'un nombre entier plus une demi-période.

5.3.1.b Aires des impulsions

Nous considérerons le cas général de deux impulsions brèves dont les aires sont différentes. La première impulsion a une aire θ_1 et la seconde une aire θ_2 . Nous rappelons que :

$$\theta_n = \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega_n(t') dt' \quad (5.12)$$

où $\Omega_n(t')$ est proportionnel à l'enveloppe de l'impulsion laser :

$$\Omega_n(t') = \frac{\mu \cdot \mathbf{E}_0}{\hbar} \text{sech} \left(\frac{t'}{\tau} \right) \quad (5.13)$$

5.3.2 Dynamique du système

Dans cette section, nous présentons la méthode générale donnant accès à l'évolution temporelle de l'état du système $\rho(t)$ soumis, d'une part à deux impulsions laser quasi-instantanées et, d'autre part aux interactions avec son environnement produisant la décohérence. L'hypothèse (4.3.1.a) permet une résolution séquentielle du problème en quatre sous-problèmes, la solution générale nécessitant de raccorder aux limites les quatre solutions obtenues indépendamment.

Nous commençons par poser le problème et isoler les quatre étapes du calcul ; ensuite, la résolution des équations de Bloch régissant l'interaction du système avec la seconde impulsion sera présentée en détails.

5.3.2.a Découpage en 4 étapes

La figure (5.1) montre une simulation représentant, en trait plein rouge, l'évolution de la population de l'état excité σ_{11} en fonction du temps lorsque le système interagit avec deux impulsions laser successives, l'une à $t = 0$ et l'autre à $t = \delta$, schématisées en pointillés bleus sur la figure. Pour cette simulation, nous avons choisi des valeurs typiques pour les constantes de relaxation : $T_1 = T_2 = 200$ ps, et 1 ps pour la durée des impulsions dont les enveloppes sont des fonctions sécantes hyperboliques.

Etape n° 1 : préparation d'un état quantique (t=0)

La segmentation de l'évolution de la population σ_{11} et de la matrice ρ tout entière apparaît clairement sur la figure (5.1). Tout d'abord, le système, initialement dans l'état

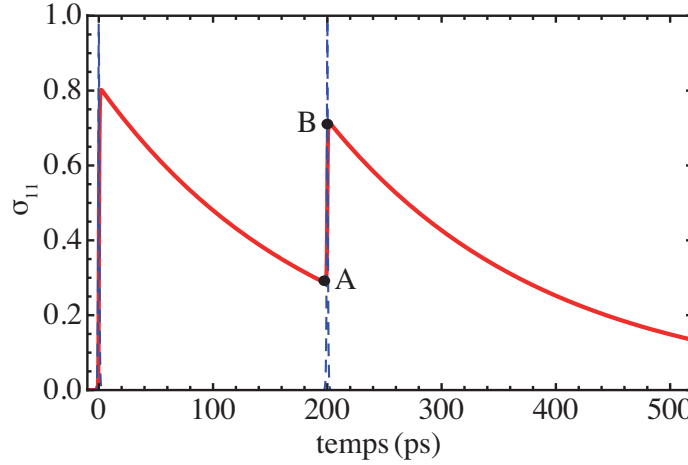


FIGURE 5.1 : Population de l'état excité σ_{11} en fonction du temps (trait plein rouge) d'une boîte quantique soumise à deux impulsions identiques séparées par un délai $\delta = 200$ ps (tirets bleus).

vide, $|\psi(t = 0^-)\rangle = |0\rangle$, interagit avec une première impulsion d'aire θ_1 lui faisant subir une oscillation de Rabi. Nous noterons l'intervalle temporel pendant lequel se produit l'interaction de la manière suivante : $[0^-, 0^+]$. L'approximation d'interaction quasi-instantanée a deux conséquences : premièrement, les processus de relaxation peuvent être négligés et, deuxièmement, l'évolution de ρ est instantanée. Par exemple, sur la figure, la population σ_{11} passe directement de la valeur 0 à 0.8. Dans la suite, cela permettra de calculer facilement l'aire sous la courbe rouge.

L'impulsion prépare un état cohérent qu'il est possible d'écrire sous la forme de la fonction d'onde suivante (aucun processus de décohérence n'ayant encore eu lieu) :

$$|\psi(t = 0^+)\rangle = \cos\left(\frac{\theta_1}{2}\right)|0\rangle - i \sin\left(\frac{\theta_1}{2}\right)e^{-i\omega_0 0^+}|1\rangle \quad (5.14)$$

Il n'est pas possible d'omettre le facteur d'évolution temporelle $e^{i\omega_0 0^+}$ parce que $\omega_0 \gg \frac{1}{\tau}$.

De façon équivalente, la fonction d'onde $|\psi(0^+)\rangle$ peut s'écrire sous la forme d'une matrice densité. De façon générale, la connaissance d'une fonction d'onde permet toujours de trouver la matrice densité correspondante en utilisant la propriété suivante :

$$|\psi\rangle = a|0\rangle + b|1\rangle \implies \rho = \begin{pmatrix} bb^* & ba^* \\ b^*a & aa^* \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

L'état du système à la sortie de la première impulsion s'écrit donc :

$$\rho(0^+) = \begin{pmatrix} \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) & -i e^{-i\omega_0 0^+} \frac{\sin \theta_1}{2} \\ i e^{i\omega_0 0^+} \frac{\sin \theta_1}{2} & \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \end{pmatrix} \quad (5.16)$$

Étape n° 2 : 1^{re} évolution libre entre $t = 0^+$ et $t = \delta^-$

La deuxième étape est une évolution libre du système entre les instant 0^+ et δ^- , pendant laquelle la dynamique du système est uniquement gouvernée par les processus de relaxation. Nous nous attendons à ce que la population σ_{11} décroisse de façon exponentielle durant cette étape. Les équations de Bloch optiques régissant l'évolution libre sont obtenues à partir des équations (4.49) en posant $\Omega_1(t) = 0$:

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -\frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (5.17)$$

L'intégration triviale du système d'équations (5.17) permet de trouver l'expression de la matrice densité entre les deux impulsions. Pour $t \in [0^+, \delta^-]$, l'état du système est le suivant :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(0^+) e^{-t/T_1} & \sigma_{10}(0^+) e^{-i\omega_0 t} e^{-t/T_2} \\ \sigma_{01}(0^+) e^{i\omega_0 t} e^{-t/T_2} & 1 - \sigma_{11}(0^+) e^{-t/T_1} \end{pmatrix} \quad (5.18)$$

Nous remarquons que la décohérence est simplement prise en compte globalement en ajoutant des facteurs d'amortissement aux éléments de la matrice densité $\rho(0^+)$.

L'état du système au temps $t = \delta^-$ immédiatement avant son interaction avec la seconde impulsion est donc représenté par la matrice densité suivante :

$$\rho(\delta^-) = \begin{pmatrix} \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta/T_1} & -i e^{-i\omega_0 \delta^-} \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-\delta/T_2} \\ i e^{i\omega_0 \delta^-} \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-\delta/T_2} & 1 - \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta/T_1} \end{pmatrix} \quad (5.19)$$

Dans les arguments des exponentielles décroissantes, le temps qui apparaît n'est pas δ^- mais simplement δ . De fait, les trois temps δ^- , δ^+ et δ possèdent la même valeur numérique puisque l'interaction est instantanée et, dans le but d'alléger l'écriture, on remplace δ^- et δ^+ par δ , là où il n'y a pas d'ambiguïté. Au contraire, la variable de ρ doit obligatoirement être δ^- , le signe "—" met en évidence le fait que la matrice densité est celle correspondant à l'état du système précédant immédiatement l'impulsion ; les deux matrices densités $\rho(\delta^-)$ et $\rho(\delta^+)$ étant complètement différentes.

Etape n° 3 : manipulation de l'état au temps $t = \delta^-$

La troisième étape est constituée par la manipulation instantanée de l'état au temps $t = \delta$. A nouveau, à l'instar de la première étape du calcul, toute relaxation sera négligée. Le système interagit avec une seconde impulsion d'aire θ_2 . L'interaction est décrite par les équations de Bloch optiques. Il faut donc les résoudre, avec l'état $\rho(\delta^-)$ comme condition initiale, pour trouver l'état du système immédiatement après cette interaction $\rho(\delta^+)$. Le calcul explicite est reporté dans la section 5.3.2.b.

Etape n° 4 : 2^{ème} évolution dans le noir entre $t = \delta^+$ et $t = +\infty$

Durant cet intervalle de temps, le système évolue de nouveau librement. Les équations d'évolution des quatre éléments de la matrice densité sont les équations (5.17). Connaissant l'état du système $\rho(\delta^+)$ au temps $t = \delta^+$, son état est également connu à tout instant ultérieur. Pour $t \in [\delta^+, +\infty]$, l'état du système est le suivant :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(\delta^+) e^{-t/T_1} & \sigma_{10}(\delta^+) e^{-i\omega_0 t} e^{-t/T_2} \\ \sigma_{01}(\delta^+) e^{i\omega_0 t} e^{-t/T_2} & 1 - \sigma_{11}(\delta^+) e^{-t/T_1} \end{pmatrix} \quad (5.20)$$

5.3.2.b Résolution des équations de Bloch gouvernant l'évolution lors de l'étape n° 3

Mise en équation

Nous cherchons à résoudre la troisième étape du calcul, la seule non triviale. Sur l'intervalle de temps $[\delta^-, \delta^+]$, seule l'interaction lumière-matière est conservée, tous les termes de relaxation intervenant dans le système d'équations (4.49) étant négligés. Sous excitation résonnante, les équations de Bloch optiques s'écrivent de la manière suivante :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = \frac{i}{2}\Omega(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = \frac{i}{2}\Omega(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -\dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) \end{cases} \quad (5.21)$$

Nous rappelons que le système d'équations (5.21) a été obtenu dans l'approximation du référentiel tournant en effectuant le changement de variable suivant :

$$\hat{\sigma}_{10}(t) = \sigma_{10} e^{i(\omega_L t + \phi)} \quad (5.22)$$

$$\hat{\sigma}_{01}(t) = \sigma_{01} e^{-i(\omega_L t + \phi)} \quad (5.23)$$

La deuxième équation du système (5.21) s'intègre facilement. En utilisant la conservation de la population totale, nous trouvons que la constante d'intégration vaut 1 :

$$\sigma_{00}(t) + \sigma_{11}(t) = 1 \quad (5.24)$$

L'intégration de la quatrième équation donne :

$$\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t) = \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \sin \phi \quad (5.25)$$

où la constante d'intégration provient de la condition initiale suivante, à $t = \delta^-$:

$$\hat{\sigma}_{01}(\delta^-) + \hat{\sigma}_{10}(\delta^-) = \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \sin \phi \quad (5.26)$$

Avec les équations (5.24, 5.25), les équations de Bloch (5.21) se réduisent à un système de deux équations différentielles à deux inconnues $\sigma_{11}(t)$ et $\hat{\sigma}_{10}(t)$:

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = i \Omega_2(t) \left(\hat{\sigma}_{10}(t) - \frac{C}{2} \right) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = i \Omega_2(t) \left(\sigma_{11}(t) - \frac{1}{2} \right) \end{cases} \quad (5.27)$$

où nous avons posé $C = \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \sin \phi$.

Solution générale

Supposer l'interaction quasi-instantanée nous permet de résoudre le système (5.27) en tenant compte de la vraie forme temporelle de l'impulsion. Dans les cas où cette hypothèse ne tient plus ou dans le cas d'un *detuning* non nul, l'enveloppe de l'impulsion doit être remplacée par un créneau afin de résoudre analytiquement les équations.

Les conditions initiales étant les suivantes :

$$\begin{cases} \sigma_{11}(\delta^-) = \sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) e^{-\delta/T_1} \\ \hat{\sigma}_{10}(\delta^-) = -i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{i\phi} e^{-\delta/T_2} \\ \hat{\sigma}_{01}(\delta^-) = i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-i\phi} e^{-\delta/T_2} \end{cases} \quad (5.28)$$

la solution générale, valable uniquement sur l'intervalle temporel $[\delta^-, \delta^+]$, est donnée par les deux expressions suivantes :

$$\sigma_{11}(t) = \frac{1}{2} + \left[\sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) e^{-\delta/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos(\theta_2(t)) + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \cos \phi \right] \sin(\theta_2(t)) \quad (5.29)$$

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_{10}(t) = \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-\delta/T_2} \sin \phi - \left[\frac{i}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \cos \phi \right] \cos(\theta_2(t)) \\ + i \left[\sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) e^{-\delta/T_1} - \frac{1}{2} \right] \sin(\theta_2(t)) \end{aligned} \quad (5.30)$$

où $\theta_2(t)$ est l'aire partielle de l'impulsion calculée entre les instants δ^- et t , définie par l'intégrale suivante :

$$\theta_2(t) = \int_{\delta^-}^t \Omega_2(t') dt' \quad (5.31)$$

Dans la suite, nous regardons de plus près l'expression (5.29) donnant l'évolution de la population du niveau excité pendant l'interaction avec la seconde impulsion lumineuse. Nous allons réécrire cette expression afin de faire apparaître explicitement les différentes contributions physiques qui participent à l'évolution de la population.

L'expression de la population du niveau excité immédiatement après l'interaction de la boîte quantique avec la seconde impulsion est simplement obtenue en remplaçant l'aire partielle $\theta_2(t)$ par l'aire totale de l'impulsion θ_2 :

$$\sigma_{11}(\delta^+) = \frac{1}{2} + \left[\sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) e^{-\delta/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos \theta_2 + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta/T_2} \cos \phi \right] \sin \theta_2 \quad (5.32)$$

L'expression (5.32) peut être réarrangée de telle manière à faire apparaître la somme de trois termes, correspondant chacun à des processus physiques modifiant la population du niveau excité lors de l'interaction de la boîte quantique avec la seconde impulsion laser. Les paramètres contrôlés par l'expérimentateur sont les aires des impulsions : θ_1 et θ_2 et la différence de phase ϕ entre les deux impulsions. Les trois termes sont les suivants :

$$\sigma_{11}(\delta^+, \theta_1, \theta_2, \phi) = \sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) e^{-\delta/T_1} \quad (5.33)$$

$$- \sin^2 \left(\frac{\theta_2}{2} \right) \Delta_I(\delta^-) \quad (5.34)$$

$$+ \frac{1}{2} \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos \phi e^{-\delta/T_2} \quad (5.35)$$

où $\Delta_I(t)$ est l'inversion de population à l'instant t définie par :

$$\Delta(t) = \sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t) \quad (5.36)$$

Par la suite, nous donnons une interprétation physique des trois termes (5.33-5.35).

Terme (5.33) : population initiale au temps $t = \delta^-$

D'abord, le terme (5.33) correspond à la valeur de la population du niveau excité au temps $t = \delta^-$, c'est-à-dire juste avant la manipulation de l'état par la seconde impulsion. C'est donc l'état que l'impulsion va manipuler : il correspond au point A de coordonnées $(\delta^-, \sigma_{11}(\delta^-))$ sur la figure (5.1). Les deux contributions suivantes sont responsables du passage quasi-instantané de la population du point A au point B .

Terme (5.34) : interaction incohérente (absorption et émission stimulée)

Nous distinguons une contribution incohérente et une autre cohérente. Le terme (5.34) correspond à la partie incohérente de l'interaction. Elle est proportionnelle à l'inversion de population, $\Delta_I(\delta^-)$, au temps $t = \delta^-$. En effet, cette contribution prend en compte la compétition entre, d'une part, l'absorption d'un photon, proportionnelle à la population du niveau fondamental $\sigma_{00}(\delta^-)$, et d'autre part, le processus inverse d'émission stimulée d'un photon, proportionnel à la population du niveau excité $\sigma_{11}(\delta^-)$. Le facteur $\sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right)$ tient compte de l'intensité du laser dans l'amplitude de ces processus.

Une interprétation probabiliste plus claire de ce terme apparaît lorsqu'il est exprimé en fonction de l'inversion de population $\Delta_I(0^+)$ de l'état préparé initialement. Le terme (5.34) se scinde alors en deux comme suit :

$$\sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) \Delta_I(\delta^-) = \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) \Delta_I(0^+) e^{-\delta/T_1} \quad (5.37)$$

$$+ \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) [1 - e^{-\delta/T_1}] \quad (5.38)$$

où

$$\Delta_I(0^+) = \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) - \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \quad (5.39)$$

En terme d'évènement unique, l'interprétation peut se faire de la manière suivante : à l'instant δ^- , soit le système a relaxé avec la probabilité $e^{-\delta/T_1}$, c'est-à-dire que la paire électron-trou s'est recombinaée, soit il n'a pas relaxé, la probabilité correspondante étant donnée par $(1 - e^{-\delta/T_1})$. Dans le premier cas, la paire photocréée par la première impulsion a relaxé entre les instants $t = 0$ et $t = \delta$; la seconde impulsion crée une population dans le niveau excité égale à $\sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right)$ comme cela apparaît dans le terme (5.38). Dans le second cas, la paire électron-trou ne s'est pas recombinaée entre les instants $t = 0$ et $t = \delta$, si bien que la seconde impulsion génère une compétition entre absorption et émission stimulée, l'une et l'autre étant respectivement proportionnelles à $\sigma_{00}(0^+)$ et $\sigma_{11}(0^+)$.

Terme (5.35) : Interaction cohérente

Enfin le terme (5.35) tient compte de la partie cohérente de l'interaction entre l'état quantique défini par $\rho(\delta^-)$ et l'onde électromagnétique. Cette interaction est dite cohérente parce qu'elle donne lieu à un phénomène d'interférences entre le champ incident et le dipôle oscillant de l'état $\rho(\delta^-)$. Ce terme dépend donc de la différence de phase ϕ entre les deux impulsions laser comme attendu pour des interférences. Celles-ci s'amortissent exponentiellement avec un temps caractéristique, le temps de cohérence T_2 .

Le facteur $(\sin \theta_1 \sin \theta_2)$ joue un rôle important dans la suite. En effet, en nous limitant au cas de deux impulsions d'aire identiques $\theta_1 = \theta_2 = \theta$, nous envisageons les deux cas limites suivants : $\sin^2 \theta = 0$ et $\sin^2 \theta = 1$.

La première valeur non triviale vérifiant la première limite est $\theta = \pi$. Nous remarquons que la luminescence intégrée générée par une séquence de deux impulsions π ne dépend pas de la différence de phase ϕ entre ces deux impulsions. Le terme (5.35) étant nul, la population ne dépend pas non plus du temps de cohérence T_2 . Nous tirons partie de cette propriété dans la section 5.5 pour mesurer des temps de vie.

Enfin, l'état $\pi/2$ vérifie la seconde égalité. C'est dans ce cas que la partie cohérente de l'interaction est la plus grande. Nous exploitons cette propriété dans la section 5.4 pour mesurer le temps de cohérence des états. Nous reviendrons en détail sur cette interaction dans la section suivante.

Pour conclure cette section générale, il nous reste à faire le lien entre les mesures expérimentales et les solutions des équations de Bloch optiques qui viennent d'être obtenues. La luminescence intégrée par un spectromètre est proportionnelle à l'aire sous la courbe rouge de la figure (5.1), i.e. à l'expression suivante :

$$\begin{aligned} L(\delta, \theta, \phi) &\propto \sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) \int_0^\delta e^{-t/T_1} dt + \sigma_{11}(\delta^+, \phi) \int_\delta^{+\infty} e^{-(t-\delta)/T_1} dt \\ L(\delta, \theta, \phi) &\propto \sin^2 \left(\frac{\theta_1}{2} \right) T_1 (1 - e^{-\delta/T_1}) + \sigma_{11}(\delta^+, \phi) T_1 \end{aligned} \quad (5.40)$$

Cette formule nous sert à ajuster les données expérimentales que nous présentons dans la section suivante.

5.4 Mesure du temps de cohérence

5.4.1 Principe de la mesure

Dans la section précédente, il a été démontré qu'un système à deux niveaux, constituant un dipôle oscillant, pouvait interférer avec une onde électromagnétique. La mesure

du temps de cohérence par contrôle cohérent repose sur la mesure de l'amortissement du contraste de ces interférences en fonction du temps.

La mesure est réalisée en utilisant un train de deux impulsions $\pi/2$. En effet, dans cette situation, les équations (5.35) et (5.40) nous indiquent que l'amplitude du terme d'interférences est la plus grande. Nous pouvons nous rendre compte que cette configuration maximise le contraste des interférences entre l'oscillation dipolaire et le champ électrique de la seconde impulsion en calculant l'amplitude du dipôle associé à un état $\pi/2$.

Dipôle moyen d'un état $\pi/2$

D'après la formule (5.33-5.35), le temps de cohérence T_2 est un paramètre qui intervient pour toute séquence d'impulsions d'aire différente d'un multiple de π . La configuration présentant à la fois le maximum de contraste et une intensité de luminescence la plus intense correspond à deux impulsions $\pi/2$. Pour le montrer, nous allons calculer le dipôle moyen au temps $t = \delta$ d'un état $\pi/2$ préparé au temps $t = 0$. Tout d'abord, écrivons l'état du système $\rho(\delta^-)$ au temps $t = \delta^-$:

$$\rho(\delta^-) = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}e^{-\delta/T_1} & -\frac{i}{2}e^{-i\omega_0\delta^-}e^{-\delta/T_2} \\ \frac{i}{2}e^{i\omega_0\delta^-}e^{-\delta/T_2} & 1 - \frac{1}{2}e^{-\delta/T_1} \end{pmatrix} \quad (5.41)$$

Nous remarquons que cet état possède les termes de cohérence dont le module est maximum pour un temps de cohérence donné. La définition générale de la matrice densité (5.15) impose un module maximum égal à 1/2 sans décohérence. La valeur moyenne du dipôle $\hat{\mu}$ associé à cet état est aussi la plus grande.

Par définition [96] :

$$\langle \hat{\mu} \rangle = \mu (\sigma_{10} + \sigma_{01}) \quad (5.42)$$

En utilisant l'équation (5.41), il vient :

$$\begin{aligned} \langle \hat{\mu}(\delta^-) \rangle &= \mu \left(-\frac{i}{2}e^{-\delta/T_2} e^{-i\omega_L\delta^-} + \frac{i}{2}e^{-\delta/T_2} e^{i\omega_L\delta^-} \right) \\ &= -\mu e^{-\delta/T_2} \sin \omega_L\delta^- \end{aligned} \quad (5.43)$$

L'amplitude de l'oscillation est en effet la plus grande possible en tenant compte de l'amortissement : $\mu e^{-\delta/T_2}$.

D'après les équations (5.33-5.35), appliquées au cas de deux impulsions $\pi/2$ ($\theta_1 = \theta_2 = \theta = \pi/2$), la population de l'état excité après l'interaction avec la seconde impulsion vaut :

$$\sigma_{11}(\delta^+, \theta = \pi/2, \phi) = \frac{1}{2} (1 + \cos \phi e^{-\delta/T_2}) \quad (5.44)$$

Cette expression, qui ne dépend que des paramètres ϕ et T_2 , montre que la variation de population n'est causée que par l'amplitude des interférences, valant $e^{-\delta/T_2}/2$.

Expérimentalement, c'est la luminescence intégrée dans le temps que l'on mesure et qui est proportionnelle à l'expression suivante :

$$L(\delta, \phi) \propto (2 - e^{-\delta/T_1} + \cos\phi e^{-\delta/T_2}) \quad (5.45)$$

Cette expression va nous permettre d'ajuster les données expérimentales obtenues en suivant le protocole suivant.

Protocole expérimental

Pour chaque délai δ , nous mesurons l'intensité de la luminescence en fonction du déphasage ϕ entre les deux impulsions. La luminescence oscille en fonction de ϕ à un délai fixé et le contraste des franges d'interférences décroît quand le délai augmente.

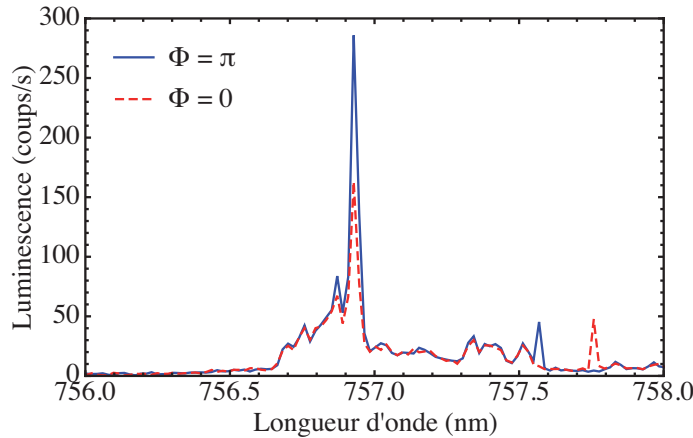


FIGURE 5.2 : Intensité de la luminescence intégrée d'une boîte quantique unique soumise à une séquence de deux impulsions $\pi/2$ séparées d'un délai δ de 100 ps. En bleu, le spectre obtenu avec deux impulsions en phase montre un signal de luminescence plus intense que le spectre rouge obtenu avec deux impulsions en opposition de phase.

La figure (5.2) montre deux spectres typiques obtenus à un délai de 100 ps. Lorsque les deux impulsions sont en phase, comme sur le spectre bleu, l'intensité de la luminescence atteint un maximum. Dans ce cas, ainsi que nous l'avons démontré dans le chapitre 4, l'oscillation dipolaire est en quadrature avant avec le champ électrique de la seconde impulsion, ce qui donne lieu à des interférences constructives. Le spectre rouge représente, au contraire, le minimum d'intensité de la luminescence, obtenue pour deux impulsions en opposition de phase.

A chaque délai, nous enregistrons une dizaine de spectres pour différents déphasages. Cela permet de reconstituer une oscillation complète de l'intensité de la luminescence

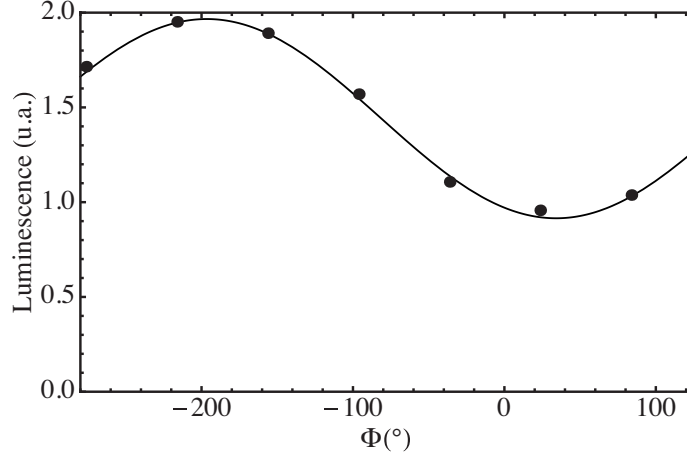


FIGURE 5.3 : Intensité de la luminescence intégrée en fonction de la différence de phase ϕ entre les deux impulsions $\pi/2$ à délai δ fixé à 100 ps. Chaque point expérimental nécessite l'acquisition d'un spectre montré sur la figure (5.2). Le signal est normalisé par l'intensité de la luminescence d'une boîte quantique excitée par une seule impulsion.

comme le montre la figure (5.3). Sur cette dernière, l'intensité de la luminescence est normalisée par l'intensité obtenue par une excitation avec une seule impulsion.

Expérimentalement, nous ne pouvons pas accéder à une mesure directe de la différence de phase absolue ϕ entre les impulsions; nous la déduisons de l'intensité de la luminescence. En fait, nous verrons dans la section 5.7.1 qu'en présence de *detuning*, cette procédure expérimentale ne permet pas de remonter au déphasage absolu entre les impulsions. Donc, de manière générale, l'axe du déphasage est défini à une constante près qui ne joue aucun rôle dans le traitement des résultats suivants où seules des différences de déphasage ont une importance.

5.4.2 Résultats expérimentaux

Nous présentons les résultats expérimentaux concernant les mesures de temps de cohérence de la transition fondamentale des boîtes quantiques de GaAs (échantillon A) et d'InAs (échantillon B).

5.4.2.a Échantillon A

Les expériences de contrôle cohérent présentées dans cette section ont été réalisées sur la même boîte quantique que celle dont nous avons reporté les oscillations de Rabi sur la figure (4.10). D'après la courbe présentée sur cette figure, la puissance moyenne, correspondant à des impulsions d'aire égale à $\pi/2$, vaut $1.7 \mu\text{W}$.

Franges d'interférences

L'équation (5.45) indique que la population σ_{11} oscille en fonction de ϕ à délai fixe. La figure (5.4) montre les enveloppes de l'oscillation observée sur la figure (5.3). Les cercles rouges représentent l'enveloppe supérieure obtenue avec deux impulsions en phase et les points bleus, l'enveloppe inférieure obtenue avec deux impulsions en opposition de phase.

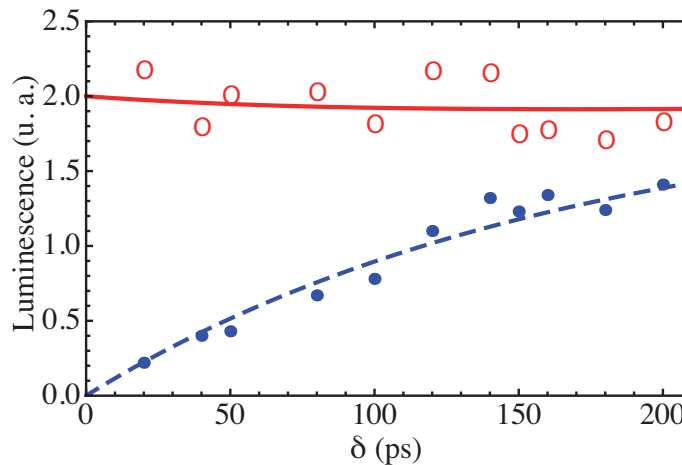


FIGURE 5.4 : Intensité de la luminescence L en fonction du délai δ avec, comme excitation lumineuse, deux impulsions $\pi/2$ en phase (cercles rouges) et en opposition de phase (points bleus). Les courbes théoriques dont les expressions sont données par l'équation (5.45) apparaissent en traits continu rouges et pointillés bleus. Les données expérimentales ont été ajustées en prenant comme constantes de relaxation $T_1 = 200$ ps et $T_2 = 170$ ps.

Contrairement aux franges d'interférences en régime d'excitation linéaire ($\theta \ll \pi$), les enveloppes n'ont pas d'axe de symétrie horizontal. Le maximum reste quasiment constant en fonction du délai : sa valeur est deux fois l'intensité de la luminescence résultant d'une seule impulsion $\pi/2$. Le minimum croît de manière monotone jusqu'à rejoindre l'enveloppe supérieure aux délais longs.

Les courbes de luminescence résolue en temps des figures (5.5a) et (5.5b) illustrent ce comportement.

Luminescence résolue temporellement

Sur la figure (5.5a) où sont reportées les expériences de luminescence résolue en temps avec une excitation par deux impulsions $\pi/2$, le délai est court devant les temps de relaxation T_1 et T_2 . Dans cette situation, le comportement de la luminescence est déterminé principalement par le déphasage entre les deux impulsions. D'un point de vue microscopique, la paire électron-trou photocréée par la première impulsion ne perd pas sa mémoire

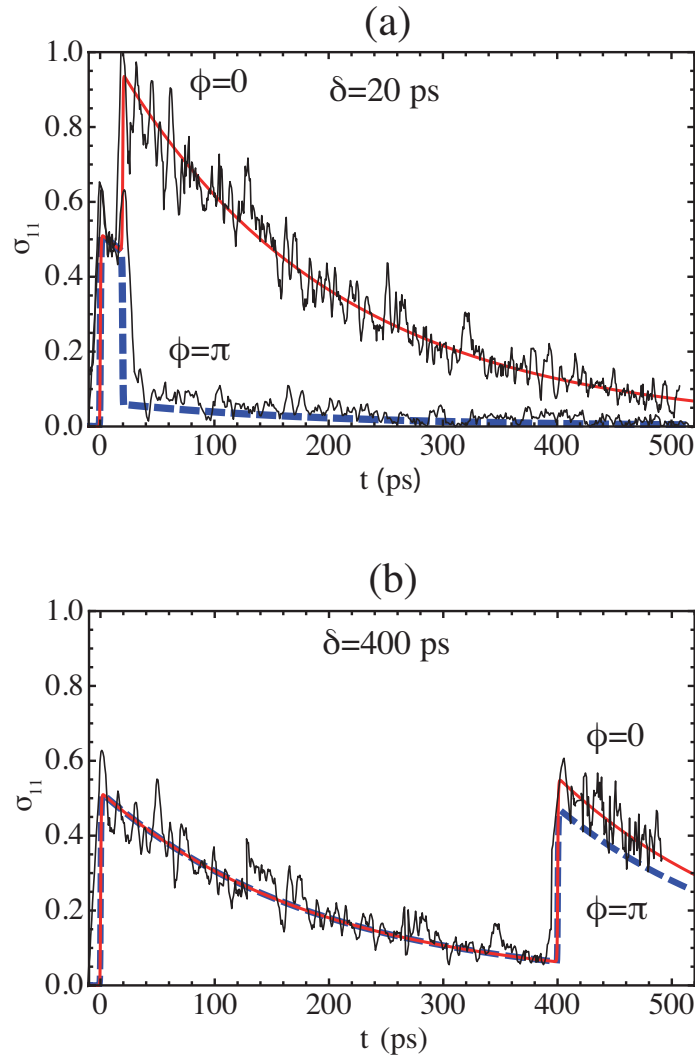


FIGURE 5.5 : Mesures à la *streak camera* de l'évolution temporelle de la population de l'état excité σ_{11} d'une boîte quantique soumise à deux impulsions $\pi/2$ séparées par un délai δ de 20 ps, court devant T_1 et T_2 (figure a) et par un délai δ de 400 ps, long devant T_1 et T_2 (figure b). Simulations avec deux impulsions en phase (traits continus rouges), et en opposition de phase (traits pointillés bleus).

de phase, ce qui rend l'interaction avec la seconde impulsion fortement dépendante du déphasage. Si le dipôle oscille en quadrature avant avec le champ électrique, alors les interférences constructives transforment l'état $\pi/2$ en un état π (courbe rouge en trait plein). Dans le cas où le dipôle oscille en retard de $\pi/2$, les interférences destructives qui ont lieu amortissent totalement l'oscillation dipolaire (courbe bleue en pointillés) transformant l'état $\pi/2$ en état vide.

Au contraire, pour des délais longs devant les constantes de relaxation, la luminescence est quasiment indépendante du déphasage. En effet, les aires sous les courbes rouge, pour

laquelle $\phi = 0$, et bleue, pour laquelle $\phi = \pi$, de la figure (5.5b) sont presque égales. Au niveau microscopique, la paire électron-trou créée par la première impulsion a une forte probabilité de recombinaison entre les temps $t = 0$ et $t = \delta$, si bien que la seconde impulsion crée un autre état $\pi/2$ au temps $t = \delta$ identique à l'état $\pi/2$ photocréé par la première impulsion.

De plus, en comparant les deux courbes rouges des figures (5.5a) et (5.5b) obtenues avec deux impulsions en phase à des délais différents, nous constatons que les aires sous ces deux courbes sont presque égales. En effet, l'intensité de la luminescence provenant de la relaxation d'un état π est identique à celle provenant des relaxations successives de deux états $\pi/2$. Cela explique le fait que l'enveloppe supérieure de la figure (5.4) est presque constante et égale à deux fois l'intensité de la luminescence provenant de la relaxation d'un seul état $\pi/2$.

Contraste des franges d'interférences

Le contraste, C , des franges d'interférences en fonction du délai est montré sur la figure (5.6).

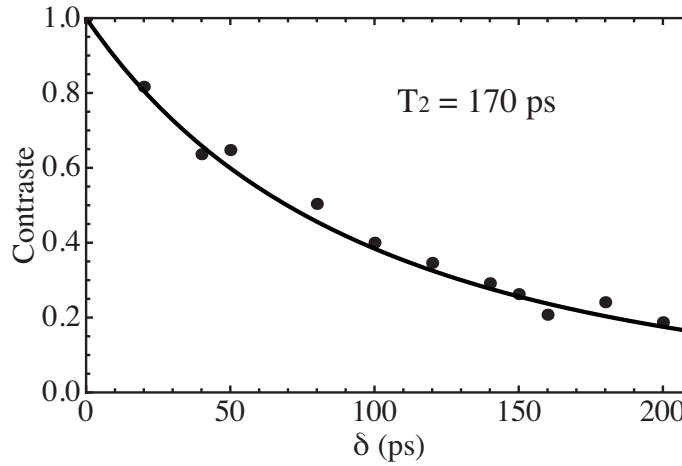


FIGURE 5.6 : Valeurs expérimentales du contraste des interférences quantiques en fonction du délai δ (points noirs). L'ajustement numérique des données expérimentales (courbe en trait plein noir), avec l'expression théorique (5.47), donne un temps de cohérence, T_2 , de 170 ps, sachant que le temps de vie est 200 ps.

Il est calculé à partir des données expérimentales montrées sur la figure (5.4) en utilisant la définition suivante :

$$C(\delta, \theta) = \frac{L(\delta, \theta, 0) - L(\delta, \theta, \pi)}{L(\delta, \theta, 0) + L(\delta, \theta, \pi)} \quad (5.46)$$

L'intérêt de présenter le résultat des mesures sous la forme de contraste est de diminuer le bruit des mesures directes d'intensité montrées sur la figure (5.4), étant donné qu'il y a la même incertitude sur les valeurs des intensités maximale et minimale correspondant au même délai. Nous utilisons donc la décroissance du contraste en fonction du délai pour déterminer la valeur du temps de cohérence T_2 en ajustant les données expérimentales avec la formule suivante :

$$C(\delta) = \frac{e^{-\delta/T_2}}{2 - e^{-\delta/T_1}} \quad (5.47)$$

Nous observons que, en régime d'excitation non linéaire, le contraste ne dépend pas uniquement du temps de cohérence T_2 , mais aussi du temps de vie T_1 . Ayant mesuré de manière indépendante le temps de vie T_1 , soit par des expériences résolues en temps, soit par des expériences de contrôle cohérent mettant en jeu deux impulsions π (voir section 5.5), la mesure du contraste nous donne accès à la valeur du temps de cohérence.

Signalons que, dans un régime d'excitation linéaire, le contraste s'exprime simplement en fonction du temps de cohérence T_2 [120] :

$$C(\delta) = e^{-\delta/T_2} \quad (5.48)$$

L'ajustement numérique des points expérimentaux montrés sur la figure (5.6), avec la formule (5.47), donne un temps de cohérence, T_2 , de 170 ps. Le temps de vie de 200 ps, utilisé dans la formule (5.47), a été mesuré à la fois avec une *streak camera* et par la méthode de contrôle cohérent présentée dans la section 5.5. Cette valeur de temps de cohérence, presque égale au temps de vie, montre que le mécanisme de décohérence dominant est l'émission spontanée. Il est possible de démontrer que la borne supérieure que le temps de cohérence peut atteindre est égale au double du temps de vie, $2T_1$ [94]. Nous donnons plus de détails sur les processus de décohérence dans la section 5.6.

5.4.2.b Échantillon B

Nous présentons ici les mesures de temps de cohérence de la boîte quantique provenant de l'échantillon B dont les oscillations de Rabi ont été présentées sur la figure (4.14b). Nous rappelons que la luminescence de cette boîte, excitée par des impulsions laser polarisées verticalement, montre à la fois une polarisation verticale et une polarisation horizontale.

Excitation laser et luminescence co-polarisées

La courbe d'oscillation de Rabi dans la polarisation verticale (courbe bleue), montrée sur la figure (4.14b), nous indique que les impulsions d'aire $\pi/2$ sont obtenues pour des puissances moyennes de 1 μW . Le contraste de la luminescence intégrée, résultant de

l'excitation résonnante de la boîte quantique avec deux impulsions de puissance moyenne $1 \mu\text{W}$, est reporté sur la figure (5.7) en fonction du délai.

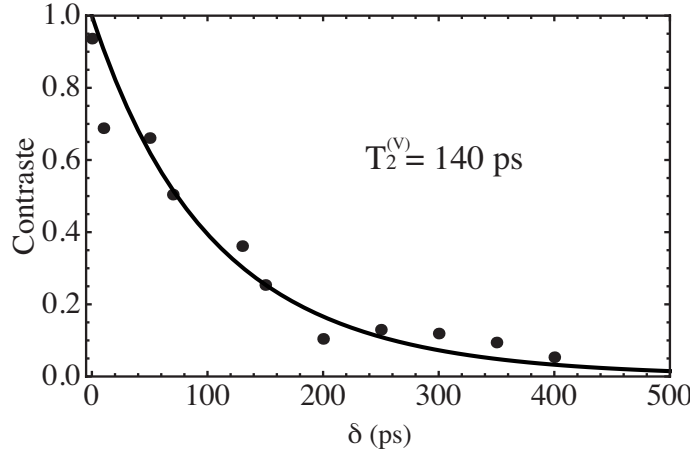


FIGURE 5.7 : Valeurs expérimentales du contraste des interférences quantiques en fonction du délai δ (points noirs). L'ajustement numérique des données expérimentales (courbe en trait plein noir), avec l'expression théorique (5.47), donne un temps de cohérence, $T_2^{(V)}$, de 140 ps, sachant que le temps de vie est de 410 ps.

L'ajustement numérique donne un temps de cohérence, $T_2^{(V)}$, de 140 ps, quand la direction de l'analyseur est verticale, le temps de vie de l'état excité, mesuré par contrôle cohérent (voir section 5.5.2.b), étant de 410 ps. Cette mesure nous indique que la perte de cohérence de l'état $\pi/2$, créé par la première impulsion, n'est pas uniquement due à l'émission spontanée.

Il est intéressant de comparer cette mesure au temps de cohérence, $T_2^{(H)}$, quand la direction de l'analyseur est horizontale.

Excitation laser et luminescence contra-polarisées

La courbe d'oscillation de Rabi dans la polarisation horizontale (courbe rouge), montrée sur la figure (4.14b), nous indique que les impulsions d'aire $\pi/2$ sont obtenues pour des puissances moyennes de $20 \mu\text{W}$. La courbe montrant le contraste de la luminescence en fonction du délai est présentée sur la figure (5.8).

Le temps de cohérence, $T_2^{(H)}$, dans cette polarisation, égal à 30 ps, est cinq fois plus petit que le temps de cohérence, $T_2^{(V)}$, mesuré dans l'autre polarisation. Cette différence entre les deux temps de cohérence est compatible avec le phénomène de déphasage induit par l'excitation (*EID*) évoqué comme hypothèse dans le quatrième chapitre, permettant de justifier l'amortissement des oscillations de Rabi avec la puissance d'excitation. De fait, la mesure du temps $T_2^{(V)}$ a été réalisée avec une puissance moyenne d'excitation de $1 \mu\text{W}$

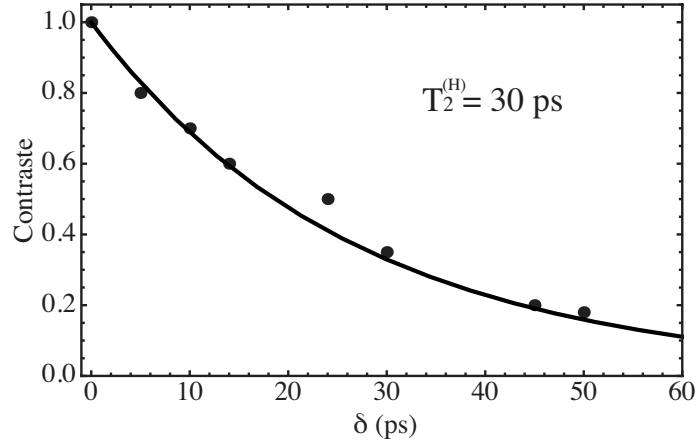


FIGURE 5.8 : Valeurs expérimentales du contraste des interférences quantiques en fonction du délai δ (points noirs). L’ajustement numérique des données expérimentales (courbe en trait plein noir), avec l’expression théorique (5.47), donne un temps de cohérence, $T_2^{(H)}$, de 30 ps, sachant que le temps de vie est 410 ps.

alors que la mesure du temps $T_2^{(H)}$ a nécessité une puissance moyenne de $20 \mu\text{W}$.

Dans la section suivante, nous présentons une méthode de contrôle cohérent utilisant une séquence de deux impulsions π permettant de mesurer le temps de vie du niveau excité.

5.5 Mesure du temps de vie

5.5.1 Principe de la mesure

Nous avons déjà remarqué dans la section 5.3.2 que le terme d’interférences (5.35) était nul dans le cas où l’aire de l’impulsion est un multiple de π . Cela s’explique par le fait qu’un état π , comme tout autre état pur, possède un dipôle moyen d’amplitude nulle.

Dipôle moyen d’un état π

L’état du système, préparé initialement dans un état π , perçu par la seconde impulsion au temps $t = \delta$ est décrit par la matrice densité suivante :

$$\rho(\delta^-) = \begin{pmatrix} e^{-\delta/T_1} & 0 \\ 0 & 1 - e^{-\delta/T_1} \end{pmatrix} \quad (5.49)$$

Les termes non diagonaux restent nuls au cours du temps pour tout état pur, tel que l’état π . D’après l’équation (5.42), le dipôle moyen d’un tel état est nul à tout instant, si bien qu’il ne peut pas interférer avec une onde électromagnétique.

L'état $\rho(\delta^-)$ ne dépendant pas du temps de cohérence T_2 , l'état $\rho(\delta^+)$ résultant de sa manipulation avec une seconde impulsion π ne peut donc pas dépendre de ce temps. Par conséquent, le seul temps de relaxation jouant un rôle dans cette configuration est le temps de vie T_1 . En présentant les résultats expérimentaux dans la section suivante, nous montrons comment une séquence de deux impulsions π permet de mesurer le temps de vie du niveau excité.

5.5.2 Résultats expérimentaux

Les expériences menées sur les échantillons A permettent de valider la méthode de mesure de temps de vie par contrôle cohérent en comparant les résultats obtenus par cette dernière méthode et les temps de décroissance de la luminescence obtenus avec une *streak camera*. En revanche, la méthode de contrôle cohérent est la seule qui nous permette de mesurer des temps de vie des boîtes d'InAs étant donné que le rendement quantique de notre *streak camera* est beaucoup trop faible pour permettre des mesures de décroissance temporelle de la luminescence.

5.5.2.a Échantillon A

Dans un premier temps, nous présentons les mesures de luminescence intégrée dans le temps lorsque la boîte est excitée par un train de deux impulsions π . D'après la figure (4.10), des impulsions π correspondent à une puissance moyenne d'excitation de $6 \mu\text{W}$.

Dans un second temps, nous nous appuyons sur des simulations numériques, montrant l'évolution temporelle de la population du niveau excité, pour comprendre l'effet des deux impulsions π sur les excitations d'une boîte quantique.

Luminescence intégrée

L'équation générale (5.33-5.35) donnant la population σ_{11} se simplifie de la manière suivante dans le cas où le système est excité par deux impulsions π :

$$\sigma_{11}(\delta, \theta = \pi, \phi) = 1 - e^{-\delta/T_1} \quad (5.50)$$

La luminescence intégrée possède alors l'expression suivante :

$$L(\delta) \propto 2(1 - e^{-\delta/T_1}) \quad (5.51)$$

Nous remarquons que la luminescence est proportionnelle à la probabilité que la paire électron-trou photocréée par la première impulsion au temps $t = 0$ se soit recombinaisonnée avant le temps $t = \delta$.

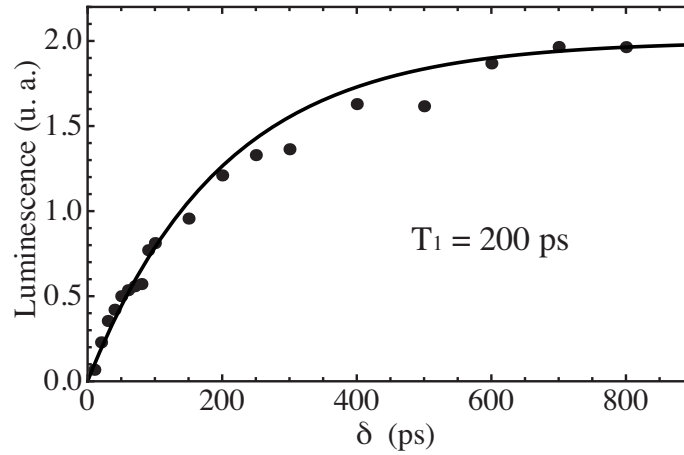


FIGURE 5.9 : Intensité de la luminescence L en fonction du délai δ avec, comme excitation lumineuse, deux impulsions π . La courbe théorique dont l'expression est donnée par l'équation (5.51) apparaît en trait continu. L'ajustement numérique des points expérimentaux noirs donne la valeur suivante du temps de vie $T_1 = 200$ ps.

La figure (5.9) présente l'intensité de la luminescence en fonction du délai. L'équation (5.51) est utilisée pour ajuster les points expérimentaux, ce qui donne un temps de vie de 200 ps, en excellent accord avec la mesure de décroissance temporelle effectuée avec la *streak camera* sous excitation strictement résonnante.

Luminescence résolue temporellement

La luminescence résolue en temps permet de comprendre facilement l'effet d'un train de deux impulsions π en interaction avec la transition fondamentale d'une boîte quantique.

La seconde impulsion peut avoir deux actions opposées sur le système avec lequel elle interagit. Si la paire électron-trou créée par la première impulsion est encore présente dans la boîte quantique au temps $t = \delta$, alors la seconde impulsion π stimule l'émission d'un photon par la paire et donc provoque sa recombinaison. Ce processus est dominant aux délais plus courts que le temps de vie T_1 , comme le montre la figure (5.10a).

Si, au contraire, la paire électron-trou a relaxé avant l'arrivée de la seconde impulsion sur la boîte quantique, alors la seconde impulsion interagit avec l'état vide pour photocréer une nouvelle paire dans la boîte. La figure (5.10b) met en évidence ce double peuplement de la boîte quantique pour des délais grands devant le temps de vie. Nous comprenons aussi que, aux délais longs, l'intensité de la luminescence intégrée vaut deux fois celle obtenue avec une seule impulsion π .

Dans la section suivante, nous appliquons ce protocole de mesure de temps de vie aux

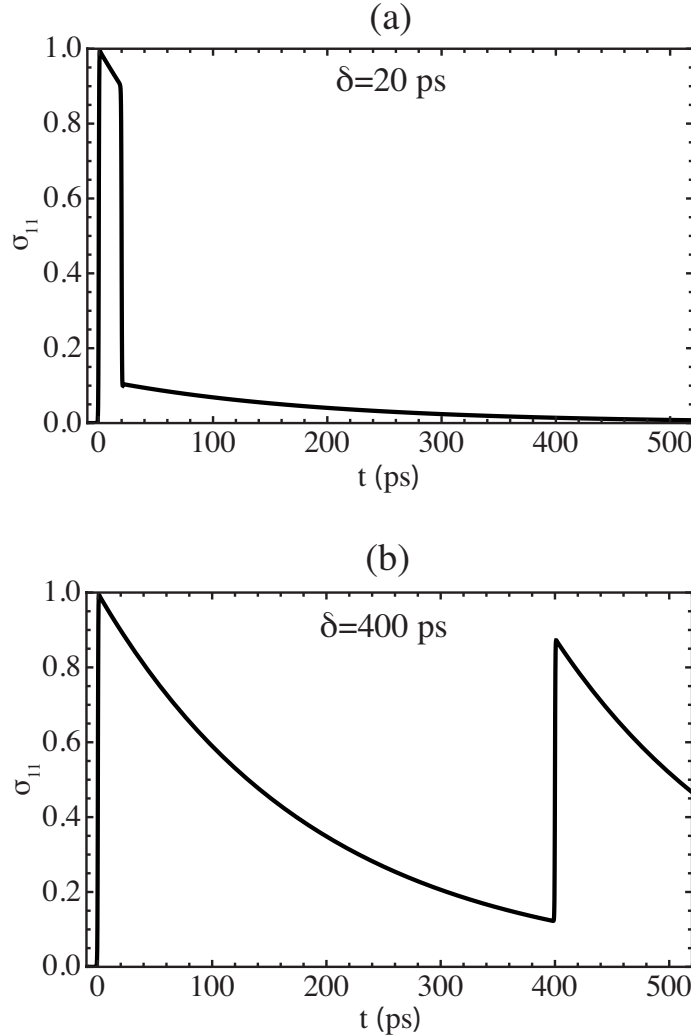


FIGURE 5.10 : Simulation de l'évolution temporelle de la population de l'état excité σ_{11} d'une boîte quantique soumise à deux impulsions π séparées, sur la figure (a), par un délai δ de 20 ps, court devant T_1 et, sur la figure (b), par un délai δ de 400 ps, long devant T_1 . Sur la figure (a), l'effet principal de la seconde impulsion π est de stimuler l'émission d'un photon et donc la recombinaison de la paire électron-trou et sur la figure (b), son principal effet est de repeupler la boîte quantique d'une paire électron-trou.

boîtes d'InAs des échantillons B.

5.5.2.b Échantillon B

Les points expérimentaux concernant la mesure du temps de vie du niveau excité de la même boîte quantique d'InAs sur laquelle les mesures de temps de cohérence ont été effectuées (voir section 5.4.2.b) sont présentés sur la figure (5.11).

La mesure du temps de vie a été effectuée sur la composante polarisée verticalement de

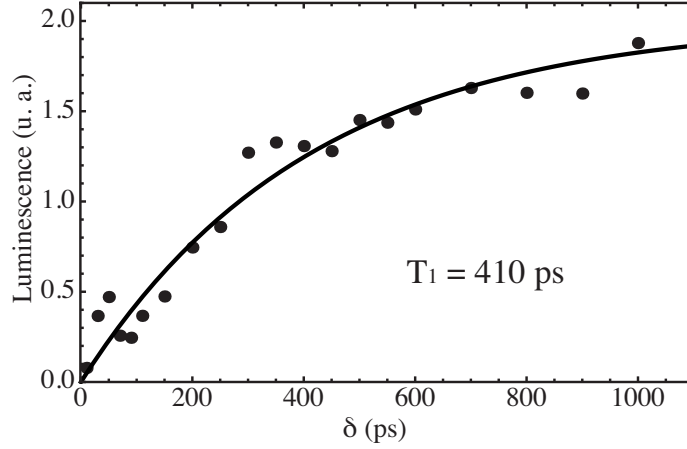


FIGURE 5.11 : Intensité de la luminescence L en fonction du délai δ avec, comme excitation lumineuse, deux impulsions π . La courbe théorique dont l'expression est donnée par l'équation (5.51) apparaît en trait continu. L'ajustement numérique des points expérimentaux noirs donne la valeur de 410 ps pour le temps de vie.

la luminescence de la boîte. Nous avons excité la boîte avec des impulsions π , de puissance moyenne égale à $10 \mu\text{W}$, d'après la courbe montrée sur la figure (4.14).

L'ajustement numérique des points expérimentaux par la formule (5.51) donne un temps de vie résonnant de 410 ps.

Dans la section suivante, nous détaillons les processus de décohérence qui limitent le temps de cohérence des états électroniques dans les boîtes quantiques.

5.6 Processus de décohérence

De manière générale, le taux de décohérence d'un objet individuel est séparé en deux contributions [122, 123, 16, 124, 53]. D'une part, la décohérence peut provenir de la relaxation de l'énergie du système à deux niveaux via l'émission de photons ou de phonons. D'autre part, la décohérence peut avoir également pour origine des processus dits de déphasage pur qui ne font pas intervenir la relaxation de l'énergie. Le taux de déphasage total $1/T_2$ est donc la somme de ces deux contributions :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2 T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (5.52)$$

où $1/T_1$ est le taux de relaxation en énergie et $1/T_2^*$ le taux de déphasage pur.

5.6.1 Relaxation de l'énergie

Le taux de relaxation de l'énergie $1/T_1$ provient de processus d'absorption ou d'émission de phonons et de photons. Nous faisons apparaître ces deux contributions en séparant

le temps de vie total T_1 en une contribution radiative T_1^R provenant de l'émission spontanée de photons et une contribution non-radiative T_1^{NR} provenant de l'émission et l'absorption de phonons [125]. Nous pouvons donc écrire :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^R} + \frac{1}{T_1^{NR}} \quad (5.53)$$

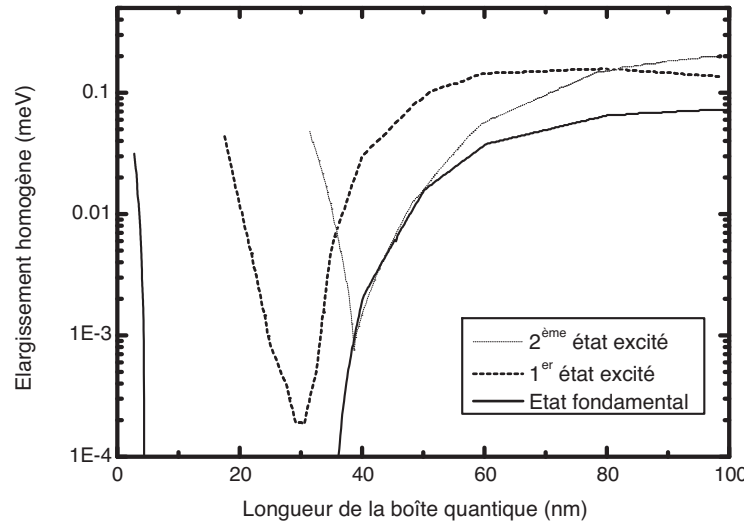


FIGURE 5.12 : Contribution de l'absorption et de l'émission de phonons acoustiques au taux de relaxation en énergie en fonction de la taille d'une boîte quantique de GaAs. D'après la thèse de Thierry Guillet [36].

La figure (5.12) montre que, pour une boîte quantique de GaAs, à une température de 10 K, l'absorption de phonons acoustiques par une paire électron-trou dans l'état fondamental se produit sur des temps dont l'ordre de grandeur est 1 ns pour des boîtes dont la longueur est comprise entre 35 nm et 45 nm, intervalle de longueur typique de nos boîtes de GaAs. Cet ordre de grandeur est tout à fait compatible avec la valeur de 2 ns trouvée dans le premier chapitre, à partir des mesures de temps de vie sous excitation non résonnante

Par ailleurs, les mesures de temps de vie sur des boîtes d'InAs montrent également que le temps de vie non radiatif est beaucoup plus long que le temps de vie radiatif [75]. Par conséquent, le temps de vie de nos boîtes quantiques est déterminé principalement par sa composante radiative.

5.6.2 Déphasage pur

Le second terme de l'équation (5.52), $1/T_2^*$, rend compte des processus de déphasage pur qui sont des processus élastiques pouvant provenir d'interactions virtuelles avec des

phonons, de la formation de polarons [126, 127, 128, 129, 130], ou encore de la diffusion spectrale [131, 132], causée par des fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes quantiques.

5.6.3 Bilan des résultats

Dans cette section, nous effectuons le bilan des valeurs des constantes de relaxation mesurées ou calculées dans ce chapitre.

- Boîte quantique de GaAs

Les constantes de relaxation de la boîte de GaAs sont les suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_1 = 200 \text{ ps} \\ T_2 = 170 \text{ ps} \\ T_2^* = 300 \text{ ps} \end{array} \right. \quad (5.54)$$

Le temps de déphasage pur, T_2^* , est presque égal au double du temps de cohérence, T_2 . La comparaison du temps de vie et du temps de déphasage pur démontre que, dans cet exemple, la décohérence est autant due à l'émission spontanée qu'aux processus de décohérence pure. Cela semble confirmer le fait que la transition fondamentale de cette boîte est assez bien isolée des interactions causant une perte de cohérence.

- Boîte quantique d'InAs

Nous avons choisi de présenter les résultats obtenus sur une boîte quantique d'InAs, qui, excitée à la résonance par un laser polarisé verticalement, émet de la luminescence polarisée dans les deux directions X et Y. Nous avons constaté que, typiquement, l'oscillation de Rabi de l'état polarisé verticalement possède une fréquence plus grande que celle de l'état polarisé horizontalement. Les oscillations, présentées sur la figure (4.14b), montrent en effet que l'inversion de population est atteinte avec une puissance de $10 \mu\text{W}$, dans le cas de la luminescence polarisée verticalement, alors qu'une puissance de $60 \mu\text{W}$ est nécessaire dans le cas de la luminescence polarisée horizontalement. Une deuxième remarque, qui semble s'appliquer à toutes les boîtes présentant de la luminescence polarisée à la fois dans les directions X et Y, est que le temps de cohérence, $T_2^{(V)}$, de l'état polarisé verticalement est plus long que le temps de cohérence, $T_2^{(H)}$, de l'état polarisé

horizontalement. Les valeurs suivantes le confirment :

$$\begin{cases} T_1 = 410 \text{ ps} \\ T_2^{(V)} = 140 \text{ ps} \\ T_2^{(V)*} = 170 \text{ ps} \end{cases} \quad (5.55)$$

$$\begin{cases} T_1 = 410 \text{ ps} \\ T_2^{(H)} = 30 \text{ ps} \\ T_2^{(H)*} = 30 \text{ ps} \end{cases} \quad (5.56)$$

Dans cet exemple, le temps de cohérence de l'état vertical est effectivement cinq fois plus grand que celui de l'état horizontal.

Nous remarquons que le même comportement a été observé sur les boîtes de GaAs présentant de la luminescence dans les deux polarisations X et Y. Cette observation n'est pas, à ce jour, complètement comprise et ne peut pas s'interpréter uniquement avec le modèle à trois niveaux que nous avons produit.

Dans la section suivante, nous étudions les effets du *detuning* sur les mesures de temps de vie et de temps de cohérence par contrôle cohérent.

5.7 Effets du *detuning*

Dans ce chapitre nous avons postulé que toutes les mesures étaient réalisées à la résonance, c'est-à-dire à *detuning* Δ nul. Or, expérimentalement nous ne pouvons pas déterminer la valeur du *detuning* avec une précision infinie. Dans cette section, nous verrons avec quelle précision le *detuning* peut être connu et quelle peut être l'influence d'un petit *detuning*, non détectable, sur les mesures des constantes de relaxation déterminées par contrôle cohérent.

Nous commençons par étudier le cas de deux impulsions $\pi/2$ en faisant un raisonnement physique relativement simple qui nous permet de prédire l'effet principal du *detuning* sur l'évolution de la population excitée en fonction de deux paramètres : le délai δ et le déphasage ϕ entre les deux impulsions. Puis, nous montrons le résultat exact des équations de Bloch optiques dans le cas d'impulsions en créneaux.

5.7.1 Influence du *detuning* sur la mesure du temps de cohérence

5.7.1.a Considérations physiques

L'influence du *detuning* dans le cas de deux impulsions $\pi/2$ se comprend assez facilement. Il faut se rappeler que l'état $\pi/2$ possède un dipôle qui oscille à la fréquence ω_L

du laser pendant l'excitation (régime forcé) mais retrouve une oscillation à sa fréquence propre ω_0 pendant son évolution libre dans le noir. Si bien que, si la seconde impulsion est en phase avec la première impulsion, celle-ci n'est pas forcément en phase avec le dipôle au temps $t = \delta$, contrairement au cas de *detuning* nul étudié dans la section 5.3. Par exemple, deux impulsions en phase peuvent donner lieu à des interférences destructives pour un certain délai δ_0 , correspondant physiquement au temps nécessaire pour que deux sinusoïdes de fréquences différentes ω_L et ω_0 , en phase au temps $t = 0$, se retrouvent déphasées d'une valeur égale à $n\pi$ (avec n entier non nul), au temps $t = \delta_0$.

Pour quantifier l'importance du *detuning* en fonction du délai, nous calculons pour un délai fixé δ_0 , la valeur du *detuning* Δ_0 qui décale deux sinusoïdes d'une demi-période, c'est-à-dire qui les déphase de π . A ce délai précis, l'intensité de la luminescence est donc minimale à cause des interférences destructives dues à la valeur non nulle du *detuning* Δ_0 .

Soit $D(t)$, le décalage temporel au temps t entre deux sinusoïdes de fréquences ω_L et ω_0 en phase à l'origine ($D(0) = 0$). Sur une période T_L , le décalage $D(T_L)$ est donné par l'expression suivante :

$$D(T_L) = \frac{2\pi}{\omega_L} - \frac{2\pi}{\omega_0} = 2\pi \left(\frac{\omega_0 - \omega_L}{\omega_0 \omega_L} \right) = \frac{2\pi \Delta}{\omega_L^2 \left(\frac{\Delta}{\omega_L} + 1 \right)} \quad (5.57)$$

Or, pour observer un signal de luminescence non nul en excitant de manière résonnante, le *detuning* reste toujours très petit devant la fréquence de résonance. Typiquement, l'énergie de résonance du niveau fondamental d'une boîte de GaAs est de 1.65 eV et le *detuning* reste toujours inférieur à 1 meV. On peut donc négliger le terme $\frac{\Delta}{\omega_L}$ dans l'équation (5.57). Si bien que cette dernière équation se simplifie en :

$$D(T_L) \approx \frac{2\pi \Delta}{\omega_L^2} \quad (5.58)$$

De plus, l'expression générale du décalage D en fonction du temps est la suivante :

$$D(t) = \frac{t}{T} D(T_L) = \frac{t}{2\pi} \omega_L D(T_L) = \frac{t \Delta}{\omega_L} \quad (5.59)$$

où nous avons remplacé $D(T_L)$ par son expression donnée par l'équation (5.58).

Pour trouver Δ_0 , il nous reste à résoudre l'équation suivante :

$$D(\delta_0) = \frac{T_L}{2} = \frac{\pi}{\omega_L} = \frac{\delta_0 \Delta_0}{\omega_L} \quad (5.60)$$

On en déduit donc l'expression de Δ_0 ci-dessous :

$$\Delta_0 = \frac{\pi}{\delta_0} \quad (5.61)$$

En utilisant l'équation (5.61), on trouve que, pour un délai de 200 ps, qui correspond à l'ordre de grandeur du temps de cohérence de la transition fondamentale d'une boîte de GaAs, le *detuning* suffisant qui donne lieu à des interférences destructives plutôt que constructives est de $10 \mu\text{eV}$. Sachant que, d'une part la résolution du spectromètre est de $50 \mu\text{eV}$ et d'autre part un *detuning* de seulement $10 \mu\text{eV}$ engendre une variation d'intensité de la luminescence absolument négligeable (d'après la courbe marron de la figure (5.15)), un *detuning* aussi petit que celui-ci n'est pas détectable. Dans la section 5.7.1.d, nous verrons comment notre protocole expérimental rend les mesures de temps de cohérence indépendantes de ces *detuning* plus petits que la résolution du spectromètre.

5.7.1.b Influence du délai

Afin de compléter la vision simple présentée dans la section 5.7.1.a, nous montrons les résultats des équations de Bloch optiques obtenus de manière analytique sous la forme de graphes de la population du niveau excité $\sigma_{11}(\delta)$ juste après la seconde impulsion en fonction du *detuning* Δ . Les oscillations de la population en fonction du *detuning* sont connues sous le nom de franges de Ramsey [133]. La démarche pour obtenir ces franges est la même que celle présentée dans la partie 5.3.2.a. Cependant, la prise en compte du *detuning* nous oblige à prendre comme enveloppe temporelle des impulsions des créneaux au lieu d'une forme en cloche, plus physique.

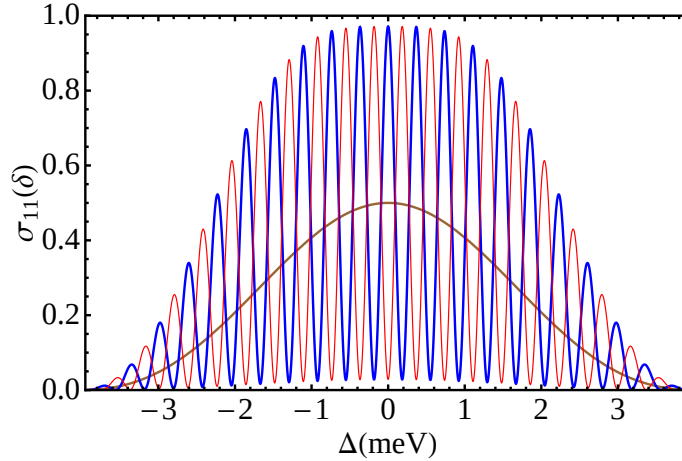


FIGURE 5.13 : Simulation du comportement de la population de l'état excité $\sigma_{11}(\delta)$ au temps $\delta = 10$ ps, juste après la seconde impulsion, en fonction du *detuning* Δ . La boîte quantique est excitée par deux impulsions $\pi/2$ en phase (courbe épaisse bleue) ou en opposition de phase (courbe fine rouge). La courbe en cloche marron en trait épais représente la population $\sigma_{11}(0^+)$ créée par la première impulsion.

En comparant les courbes bleues des figures (5.13) et (5.14), nous constatons deux effets du délai sur les franges de Ramsey. Ces courbes sont obtenues avec une différence

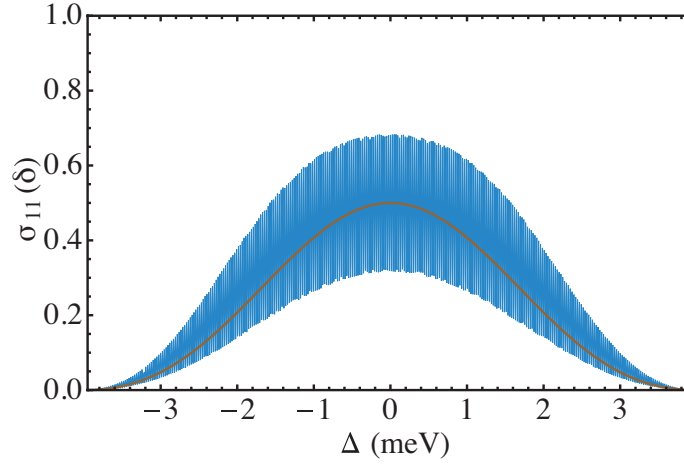


FIGURE 5.14 : Simulation du comportement de la population de l'état excité $\sigma_{11}(\delta)$ au temps $\delta = 200$ ps, juste après la seconde impulsion, en fonction du *detuning* Δ . La boîte quantique est excitée par deux impulsions $\pi/2$ en phase (courbe épaisse bleue). La population $\sigma_{11}(0^+)$ créée par la première impulsion est également représentée (courbe marron).

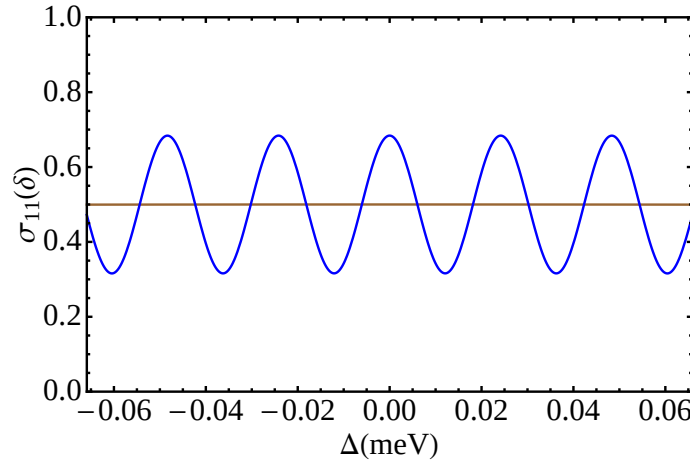


FIGURE 5.15 : Zoom autour du *detuning* nul de la figure (5.14)

de phase nulle entre les deux impulsions ($\phi = 0$), la première pour un délai δ de 10 ps et la seconde pour un délai δ de 200 ps, les constantes de relaxation étant $T_1 = 200$ ps et $T_2 = 170$ ps.

Premièrement, l'amplitude des franges diminue quand le délai augmente. Cette diminution du contraste s'explique par la présence de décohérence. Autour du délai nul, la variation du contraste en fonction du délai est donnée par la formule (5.47).

Deuxièmement, comme le modèle utilisé dans la section 5.7.1.a le prédit, la fréquence des franges est inversement proportionnelle au délai. En effet, la porteuse s'écrit $\cos\left(\frac{\delta}{0.659}\Delta\right)$ avec δ exprimée en ps et Δ en μeV , le facteur $1/0.659$ assure la conversion des ps^{-1} en μeV .

On retrouve bien la valeur annoncée dans la section 5.7.1.a pour Δ_0 lorsque $\delta_0 = 200$ ps. La porteuse passe d'un maximum au minimum voisin lorsque $\frac{\delta_0}{0.659}\Delta_0 = \pi$, ce qui donne $\Delta_0(\delta_0 = 200) = 10.35 \mu\text{eV}$. Nous lisons effectivement cette valeur sur la figure (5.15). Celle-ci est bien inférieure à la résolution du spectromètre, il n'est donc pas possible de détecter spectralement un si petit *detuning*.

Par ailleurs, nous savons d'après le quatrième chapitre que, dans le cas d'une excitation constituée d'une seule impulsion, un *detuning* entraîne une diminution de l'intensité de la luminescence par rapport à une excitation exactement résonnante, l'intensité du laser étant identique dans les deux cas. La courbe marron de la figure (5.13) montre cet effet pour une impulsion $\pi/2$. Physiquement, la largeur de cette courbe correspond à l'intervalle spectral sur lequel une boîte quantique peut absorber un photon désaccordé de la fréquence de résonance. Dans le troisième chapitre, nous avons appelé cette largeur, γ_{fort} .

Nous pourrions utiliser cette variation de la luminescence en fonction du *detuning* pour exciter exactement à la résonance. Or, la figure (5.13) montre nettement que la variation de la courbe marron sur l'intervalle $[0, 200]$ où la courbe bleue passe du maximum à un minimum voisin est négligeable et donc indétectable expérimentalement : il nous est impossible de mesurer un *detuning* inférieur à quelques centaines de μeV .

L'hypothèse d'une excitation parfaitement résonnante essentielle dans l'analyse des résultats de la section 5.3 ne peut pas être tenue expérimentalement, qu'en est-il de sa validité ? Les deux sections suivantes vont montrer pourquoi l'analyse des résultats reste correcte.

5.7.1.c Influence du déphasage

La différence de phase ϕ entre les deux impulsions constitue le second paramètre qui modifie les franges de Ramsey. La figure (5.13) montre deux systèmes de franges de Ramsey : les franges bleues sont obtenues avec deux impulsions $\pi/2$ en phase ($\phi = 0$) et les franges rouges avec les impulsions en opposition de phase ($\phi = \pi$). Dans le premier cas, la porteuse est une fonction cosinus alors que dans le second, c'est un sinus, de telle manière que, à *detuning* nul, nous retrouvons bien le comportement de la population $\sigma_{11}(\delta)$ étudié dans le quatrième chapitre. Plus généralement, le déphasage entre les deux impulsions correspond exactement à la phase à l'origine des franges de Ramsey dont la porteuse $P(\Delta; \delta, \phi)$ s'écrit donc de la manière suivante en fonction du *detuning* et des paramètres δ et ϕ :

$$P(\Delta; \delta, \phi) = \cos \left(\frac{\delta}{0.659} \Delta + \phi \right) \quad (5.62)$$

5.7.1.d Conséquence sur les mesures du temps de cohérence

D'après l'expression (5.62), le déphasage ϕ joue un rôle symétrique au produit du *detuning* par le délai ($\Delta \times \delta$). Cela est cohérent avec l'explication de l'effet du *detuning* en terme de déphasage entre l'oscillation dipolaire et l'oscillation du champ électrique de la seconde impulsion. Par conséquent, à *detuning* et à délai fixés, il existe un déphasage ϕ_{max} pour lequel le dipôle et le champ électrique oscillent en phase de manière à créer des interférences constructives. Dans cette situation, le déphasage ϕ_{min} engendrant des interférences destructives est simplement : $\phi_{max} \pm \pi$. Nous en concluons que la mesure du contraste, dans le cas d'un *detuning* non nul, se ramène à celle dans le cas d'un *detuning* nul en cherchant la valeur de ϕ_{max} qui maximise l'intensité de la luminescence. Expérimentalement, cela se traduit par le fait que l'oscillation de la luminescence sur la figure (5.3) est définie à une constante près.

5.7.2 Influence du *detuning* sur la mesure du temps de vie

L'influence du *detuning* sur la population du niveau excité σ_{11} , dans le cas d'une excitation formée de deux impulsions π , peut être comprise avec un argument physique assez simple, détaillé dans la section suivante.

5.7.2.a Franges de Ramsey avec deux impulsions π

Nous savons qu'un système à deux niveaux dans l'état π possède un dipôle moyen nul, par conséquent, l'interaction de cet état avec une impulsion d'aire quelconque ne peut pas donner lieu à des interférences. Or, nous savons également qu'une impulsion π désaccordée avec la fréquence propre de la transition ne peut pas créer un état π . Le *detuning*, selon sa valeur, ouvre donc la possibilité de préparer un état cohérent à partir d'une impulsion π . Cet état, possédant un dipôle moyen non nul, peut de nouveau interférer avec le champ électrique de la seconde impulsion π . Nous observons bien ce phénomène sur la figure (5.16).

Autour de $\Delta = 0$, le contraste des franges de Ramsey est nul, l'enveloppe des franges formant un trou. Lorsque le *detuning* augmente, le contraste augmente et atteint un maximum pour un *detuning* correspondant à la préparation d'un état $\pi/2$ (voir la courbe marron). Dans la section suivante, nous revenons sur la largeur de ce trou autour du *detuning* nul afin de quantifier les conséquences éventuelles d'un *detuning* indétectable sur la mesure des temps de vie présentée dans la section 5.5.

De plus, en comparant les courbes bleues des figures (5.16) et (5.17), pour lesquelles les délais sont respectivement 10 ps et 200 ps, nous constatons que l'influence du délai sur les franges est identique au cas précédent. La fréquence des oscillations est inverse-

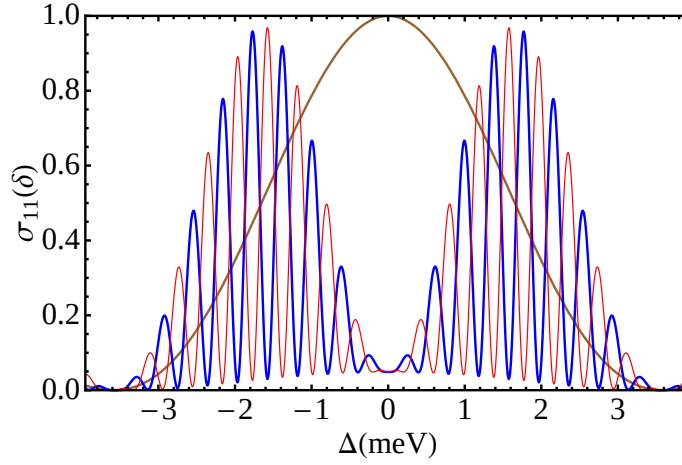


FIGURE 5.16 : Simulation du comportement de la population de l'état excité $\sigma_{11}(\delta)$ au temps $\delta = 10$ ps, juste après la seconde impulsion, en fonction du *detuning* Δ . La boîte quantique est excitée par deux impulsions π en phase (courbe épaisse bleue) ou en opposition de phase (courbe fine rouge). La population $\sigma_{11}(0^+)$ créée par la première impulsion est également représentée (courbe marron).

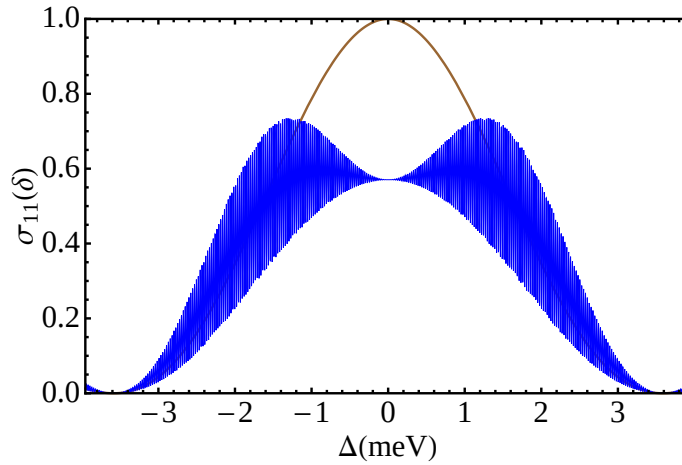


FIGURE 5.17 : Simulation du comportement de la population de l'état excité $\sigma_{11}(\delta)$ au temps $\delta = 200$ ps, juste après la seconde impulsion, en fonction du *detuning* Δ . La boîte quantique est excitée par deux impulsions π en phase (courbe épaisse bleue). La population $\sigma_{11}(0^+)$ créée par la première impulsion est également représentée (courbe marron).

ment proportionnelle au délai et l'amplitude maximum du contraste des franges diminue exponentiellement avec le délai à cause de la décohérence.

Enfin, la comparaison des courbes bleue et rouge de la figure (5.16), correspondant, respectivement, à des déphasages $\phi = 0$ et $\phi = \pi$, nous indique que le déphasage correspond à la phase à l'origine des franges de Ramsey.

5.7.2.b Conséquence sur les mesures du temps de vie

On voit sur les simulations présentées sur la figure (5.16) que la valeur de la population du niveau excité, $\sigma_{11}(\delta)$, ne dépend pas de la différence de phase entre les impulsions lorsque le *detuning* est rigoureusement nul. Expérimentalement, nous avons cherché à nous placer dans ce cas, pour mesurer l'intensité de la luminescence proportionnelle à la valeur de $\sigma_{11}(\delta)$ à *detuning* nul.

Afin de caractériser l'effet du *detuning* sur nos mesures expérimentales, nous allons estimer la largeur du trou formé par l'enveloppe supérieure des franges de Ramsey. Cette enveloppe, générée par deux impulsions π , atteint un maximum lorsque le *detuning* est tel qu'une impulsion π prépare un état $\pi/2$. Cette condition sert par ailleurs à définir la demi-largeur à mi-hauteur de la courbe marron sur la figure (5.16). Par conséquent, la largeur du trou en $\Delta = 0$ vaut la moitié de la largeur de la courbe marron, γ_{fort} .

D'après la formule de la population du niveau excité en fonction du *detuning* en régime d'excitation continue [93] :

$$\sigma_{11}(t) = \frac{\Omega_1^2}{\Omega_1^2 + \Delta^2} \sin^2 \left(\frac{\sqrt{\Omega_1^2 + \Delta^2}}{2} t \right), \quad (5.63)$$

la population du niveau excité $\sigma_{11}(0^+)$, créée par une impulsion π en créneau de durée $\tau = 1$ ps, s'écrit en fonction du *detuning* ($\Omega_1 = \pi \text{ rad.ps}^{-1}$) :

$$\sigma_{11}(0^+) = \frac{\pi^2}{\pi^2 + \Delta^2} \sin^2 \left(\frac{\sqrt{\pi^2 + \Delta^2}}{2} \right) \quad (5.64)$$

Si bien que la demi-largeur à mi-hauteur est la solution de l'équation suivante, dans laquelle nous effectuons le changement de variable : $(2X)^2 = \pi^2 + \Delta^2$:

$$\frac{\pi^2}{(2X)^2} \sin^2 X = \frac{1}{2} \quad (5.65)$$

Ce qui s'écrit encore :

$$\text{sinc} X = \frac{\sqrt{2}}{\pi} \quad (5.66)$$

La solution approchée de cette équation est $X = 2 \text{ rad}$, ce qui donne, en effectuant le changement de variable inverse, une demi-largeur de 2.48 rad.ps^{-1} , soit 1.63 meV . La largeur totale à mi-hauteur du trou en $\Delta = 0$ vaut donc environ 1.63 meV .

Nous en concluons que notre protocole expérimental de mesure du temps de vie par contrôle cohérent est sensible à l'existence d'un *detuning*, contrairement au protocole de mesure des temps de cohérence. La présence d'un *detuning* rend les mesures de luminescence dépendante de la différence de phase entre les deux impulsions π , aux délais courts devant le temps de cohérence de la transition. Cela se traduit sur les courbes de mesure de

temps de vie par la présence d'un bruit supplémentaire aux petits délais. Néanmoins, la valeur du *detuning*, calculée précédemment, nécessaire pour observer un effet significatif sur l'intensité de la luminescence, est de l'ordre du meV, c'est-à-dire bien supérieure à la résolution du spectromètre. Tant et si bien que l'amplitude de ce bruit, causé par le *detuning*, reste en général suffisamment petite pour permettre des mesures de temps de vie.

Dans le quatrième chapitre, nous avons montré comment préparer une boîte quantique dans un état particulier avec une impulsion lumineuse dont on contrôle l'intensité. Dans ce chapitre, nous avons montré la possibilité de manipuler, avec une seconde impulsion, l'état préparé par la première.

Nous avons également montré qu'une expérience de contrôle cohérent peut être utilisée pour mesurer, d'une part, le temps de cohérence d'une superposition cohérente, et, d'autre part, le temps de vie du niveau excité. Ces deux mesures, nécessitant respectivement l'utilisation d'impulsions $\pi/2$ et d'impulsions π , sont même possibles dans le cas où les oscillations de Rabi s'amortissent, étant donné que seule la première demi-période est utile.

Les mesures de temps de cohérence ont révélé deux grandes caractéristiques. Premièrement, les temps de cohérence mesurés sur la luminescence polarisée verticalement, c'est-à-dire dans la même direction que la polarisation du laser d'excitation, sont du même ordre de grandeur que les temps de vie mesurés sur la même boîte. Cela signifie que la perte de cohérence est causée de manière égale par l'émission spontanée et par des processus de déphasage pur. Deuxièmement, nous avons remarqué que le temps de cohérence de l'état polarisé horizontalement d'une boîte particulière est systématiquement plus petit que le temps de cohérence de l'état polarisé verticalement de la même boîte.

Conclusion

Les résultats présentés dans cette thèse ont été obtenus grâce à la possibilité d'exciter à la résonance la transition fondamentale de boîtes quantiques individuelles, tout en détectant leur fluorescence de résonance. La réalisation d'expériences de micro-photoluminescence strictement résonnantes a nécessité le développement d'un montage original, permettant de séparer spatialement l'excitation lumineuse et la luminescence, détectée perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau d'excitation. La configuration expérimentale de détection orthogonale à l'excitation a été possible du fait de la présence, dans nos échantillons, de guides d'onde unidimensionnels, au coeur desquels les boîtes quantiques sont épitaxiées. Ainsi, les impulsions laser, qui excitent les boîtes quantiques, restent confinées dans le guide d'onde et ne se propagent pas dans la direction de détection de la luminescence. Cependant, nous avons montré que la présence de lumière provenant du laser diffusé par les interfaces des guides d'onde constituait le principal obstacle à l'observation de la luminescence résonnante. En effet, pour des aires d'impulsions supérieures à 2π , le signal de luminescence d'une boîte unique se retrouve noyé dans le spectre du laser.

Cette configuration nous a permis d'atteindre le régime de couplage fort entre des impulsions lumineuses et la transition fondamentale de boîtes quantiques uniques, considérée comme un système à deux niveaux. Théoriquement, ce couplage se manifeste par l'oscillation des populations en fonction de l'aire des impulsions. Les courbes expérimentales d'oscillations de Rabi présentent deux déviations majeures par rapport au comportement d'un système à deux niveaux idéal.

Premièrement, certaines oscillations s'amortissent quand l'aire des impulsions augmentent. Le phénomène de déphasage induit par l'excitation (*EID*) est souvent invoqué pour expliquer un amortissement symétrique. Un terme de relaxation de la cohérence, dépendant de l'aire, introduit une enveloppe supérieure et une enveloppe inférieure à la courbe d'oscillation qui tend, dans ce cas, vers une valeur non nulle de la population du niveau excité lorsque l'aire de l'impulsion augmente. Cependant, nos données expérimentales sont davantage compatibles avec l'ajout d'un terme de relaxation de la population, linéaire avec l'aire de l'impulsion. Une variation du temps de vie avec l'aire de l'impulsion

pourrait corroborer cette hypothèse.

Deuxièmement, les mesures de *splitting* d'échange anisotrope, δ_1 , avec l'aide d'un interféromètre de Fabry-Pérot a permis de montrer que certaines boîtes quantiques possèdent des états propres linéairement polarisés selon des directions qui ne sont pas les directions cristallographiques. Dans ce cas, le laser, polarisé selon un axe cristallographique, est couplé aux deux états propres à une paire électron-trou, $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$. Expérimentalement, nous avons effectivement observé de la luminescence co-polarisée et contra-polarisée avec le laser d'excitation. Néanmoins, la modélisation d'une boîte quantique par un système à trois niveaux n'a pas permis de reproduire la différence de fréquences, constatée sur les courbes expérimentales, entre les oscillations de Rabi de la luminescence analysée dans les directions X et Y.

Nous avons, ensuite, démontré la possibilité de préparer et de manipuler l'état d'une boîte quantique, considérée comme un bit quantique, par un train de deux impulsions lumineuses en couplage fort avec la boîte. La manipulation d'un *qubit* par deux impulsions $\pi/2$, dont la différence de phase est précisément contrôlée grâce à l'utilisation d'un interféromètre de Michelson stabilisé, a pu être validée par des mesures de décroissance temporelle de la luminescence d'une boîte de GaAs, en très bon accord avec les simulations.

Nous avons en outre montré comment une expérience de contrôle peut être utilisée pour mesurer les temps de relaxation des cohérences, T_2 , et de des populations, T_1 . Cette méthode de mesure de temps de vie a été particulièrement utile sur les boîtes d'InAs, pour lesquelles notre *streak camera* ne peut pas être utilisée étant donné son mauvais rendement quantique dans l'infrarouge. Les mesures de temps de cohérence nous ont permis d'avoir plus d'informations sur les caractéristiques des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ des boîtes.

D'une part, les temps de cohérence mesurés sur la luminescence polarisée verticalement, c'est-à-dire dans la même direction que la polarisation du laser d'excitation, sont du même ordre de grandeur que les temps de vie mesurés sur la même boîte. Cela signifie que la perte de cohérence est causée de manière égale par l'émission spontanée et par des processus de déphasage pur. D'autre part, le temps de cohérence de l'état polarisé horizontalement est toujours plus petit que le temps de cohérence de l'état polarisé verticalement de la même boîte. On peut mettre en relation cette dernière remarque avec le fait que la fréquence de Rabi de l'état polarisé horizontalement est plus petite que celle de l'état polarisé verticalement. Ces différences de temps de cohérence corroborent l'hypothèse du phénomène d'*EID*, étant donné que les mesures de temps de cohérence, dans le premier cas, nécessitent des puissances d'excitation plus grandes que dans le second cas.

L'interprétation de ce comportement n'est pas complètement comprise, en particulier les différences de fréquences de Rabi en fonction de la polarisation de la luminescence, et

le lien entre la fréquence de Rabi et le temps de cohérence des états $\pi/2$.

Pour résoudre le problème d'extraction de la luminescence, nous nous tournons vers la fabrication de nouveaux échantillons dans lesquels une plus grande efficacité d'extraction de la luminescence a déjà été démontrée dans le cas de puits quantiques, mais pas encore sur des boîtes quantiques individuelles.

Références bibliographiques

- [1] P. W. Shor. *Proceedings of the 35th symposium on the foundations of computer science*. IEEE Computer Society Press, Los Alamitos, 1994, p. 124.
- [2] C. H. Bennett and D. P. DiVincenzo. Quantum information and computation. *Nature*, 404(6775) :247–255, March 2000.
- [3] J. I. Cirac and P. Zoller. A scalable quantum computer with ions in an array of microtraps. *Nature*, 404(6778) :579–581, April 2000.
- [4] A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, and A. Small. Quantum information processing using quantum dot spins and cavity qed. *Physical Review Letters*, 83(20) :4204–4207, Nov 1999.
- [5] L. M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang. Experimental realization of shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *Nature*, 414(6866) :883–887, December 2001.
- [6] R. Fiederling, M. Keim, G. Reuscher, W. Ossau, G. Schmidt, A. Waag, and L. W. Molenkamp. Injection and detection of a spin-polarized current in a light-emitting diode. *Nature*, 402(6763) :787–790, December 1999.
- [7] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, and V. Voliotis. Electron teleportation between quantum dots using virtual dark exciton. *Europhysics Letters*, page 868, June 2006.
- [8] F. Dubin, M. Combescot, G. K. Brennen, and R. Melet. Quantum control of a trapped electron spin in a quantum dot using photon polarization. *Physical Review Letters*, 101(21) :217403, Nov 2008.
- [9] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum computations with cold trapped ions. *Physical Review Letters*, 74(20) :4091–4094, May 1995.
- [10] Q. A. Turchette, C. J. Hood, W. Lange, H. Mabuchi, and H. J. Kimble. Measurement of conditional phase shifts for quantum logic. *Physical Review Letters*, 75(25) :4710–4713, Dec 1995.
- [11] Y. Nakamura, Yu Pashkin, and J. S. Tsai. Coherent control of macroscopic quantum states in a single-cooper-pair box. *Nature*, 398(6730) :786–788, April 1999.

- [12] J. M. Martinis, S. Nam, J. Aumentado, and C. Urbina. Rabi oscillations in a large josephson-junction qubit. *Physical Review Letters*, 89(11) :117901, 2002.
- [13] H. Benisty. Reduced electron-phonon relaxation rates in quantum-box systems : Theoretical analysis. *Physical Review B*, 51(19) :13281–13293, May 1995.
- [14] H. Benisty, C. M. Sotomayor Torrès, and C. Weisbuch. Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems. *Physical Review B*, 44(19) :10945–10948, Nov 1991.
- [15] U. Bockelmann and G. Bastard. Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. *Physical Review B*, 42(14) :8947–8951, Nov 1990.
- [16] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots. *Physical Review B*, 70(3) :033301, Jul 2004.
- [17] B. Eble. *Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d’InAs/GaAs sous pompage optique orienté*. PhD thesis, Paris VI, 2006.
- [18] E. B. Flagg, A. Muller, S. V. Polyakov, A. Ling, A. Migdall, and G. S. Solomon. Interference of single photons from two separate semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 104(13) :137401, Apr 2010.
- [19] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, Lidong Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *Science*, 290(5500) :2282–2285, December 2000.
- [20] C. H. Bennett and G. Brassard. *Quantum Cryptography : Public Key Distribution and Coin Tosing*. Proceedings of IEEE Intl. Conf. on Computer, Systems and Signal Processing, p. 175-179, 1984.
- [21] A. Muller, W. Fang, J. Lawall, and G. S. Solomon. Creating polarization-entangled photon pairs from a semiconductor quantum dot using the optical stark effect. *Physical Review Letters*, 103(21) :217402, Nov 2009.
- [22] R. Melet. *Manipulation tout optique des états électroniques d’une boîte quantique unique*. PhD thesis, Paris VI, 2008.
- [23] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet, and R. Grousson. Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the rabi regime. *Physical Review B*, 78(7) :073301, Aug 2008.
- [24] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao, and C. K. Shih. Resonance fluorescence from a coherently driven semiconductor quantum dot in a cavity. *Physical Review Letters*, 99(18) :187402, Nov 2007.

- [25] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel, and P. Michler. Post-selected indistinguishable photons from the resonance fluorescence of a single quantum dot in a microcavity. *Physical Review Letters*, 103(16) :167402, Oct 2009.
- [26] T. H. Stievater, X. Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham. Rabi oscillations of excitons in single quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(13) :133603, Sep 2001.
- [27] B. Patton, U. Woggon, and W. Langbein. Coherent control and polarization readout of individual excitonic states. *Physical Review Letters*, 95(26) :266401, Dec 2005.
- [28] S. Stuffer, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler. Quantum optical properties of a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum dot two-level system. *Physical Review B*, 72(12) :121301, Sep 2005.
- [29] A. J. Ramsay, S. J. Boyle, R. S. Kolodka, J. B. B. Oliveira, J. Skiba Szymanska, H. Y. Liu, M. Hopkinson, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Fast optical preparation, control, and readout of a single quantum dot spin. *Physical Review Letters*, 100(19) :197401, May 2008.
- [30] S. Stuffer, P. Machnikowski, P. Ester, M. Bichler, V. M. Axt, T. Kuhn, and A. Zrenner. Two-photon rabi oscillations in a single $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ /GaAs quantum dot. *Physical Review B*, 73(12) :125304, Mar 2006.
- [31] A. Enderlin, M. Ravaro, V. Voliotis, R. Grousson, and X. L. Wang. Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms. *Physical Review B*, 80(8) :085301, Aug 2009.
- [32] T. Guillet, R. Grousson, V. Voliotis, X. L. Wang, and M. Ogura. Local disorder and optical properties in V-shaped quantum wires : Toward one-dimensional exciton systems. *Physical Review B*, 68(4) :045319, Jul 2003.
- [33] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, and G. Weimann. Sharp-line photoluminescence and two-photon absorption of zero-dimensional biexcitons in a GaAs/AlGaAs structure. *Physical Review Letters*, 73(8) :1138–1141, Aug 1994.
- [34] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Fine structure splitting in the optical spectra of single GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 76(16) :3005–3008, Apr 1996.
- [35] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Homogeneous linewidths in the optical spectrum of a single gallium arsenide quantum dot. *Science*, 273(5271) :87–90, July 1996.
- [36] T. Guillet. *Nature du désordre et propriétés optiques des excitons dans les fils quantiques semiconducteurs : de la boîte au fil*. PhD thesis, Paris VI, 2002.

- [37] A. Vasanelli. Energy levels and far-infrared absorption of multi-stacked dots. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 11(1) :41–50, September 2001.
- [38] A. J. Williamson, L. W. Wang, and Alex Zunger. Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 62(19) :12963–12977, Nov 2000.
- [39] P. Y. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of Semiconductors*. Ed. Springer, 2005.
- [40] Y. Z. Hu, M. Lindberg, and S. W. Koch. Theory of optically excited intrinsic semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 42(3) :1713–1723, Jul 1990.
- [41] M. Combescot and W. Pogosov. Microscopic derivation of frenkel excitons in second quantization. *Physical Review B*, 77(8) :085206, Feb 2008.
- [42] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1988.
- [43] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Mécanique Quantique*. Hermann, 1973.
- [44] M. Combescot and M. N. Leuenberger. General argument supporting bose-einstein condensate of dark excitons in single and double quantum wells. *Solid State Communications*, 149(13-14) :567–571, April 2009.
- [45] A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. Continuous absorption background and decoherence in quantum dots. *Physical Review Letters*, 89(21) :216804, Nov 2002.
- [46] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa. Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states. *Physical Review Letters*, 82(20) :4114–4117, May 1999.
- [47] V. Popescu, G. Bester, and A. Zunger. Coexistence and coupling of zero-dimensional, two-dimensional, and continuum resonances in nanostructures. *Physical Review B*, 80(4) :045327, Jul 2009.
- [48] G. L. Bir and G. E. Pikus. *Symmetry and strain induced effects in semiconductors*. Ed. Wiley, 1974.
- [49] G. E. Pikus and G. L. Bir. Exchange interaction in excitons in semiconductors. *Soviet Physics JETP*, 33(108) :108–114, July 1971.
- [50] T. Takagahara. Theory of exciton doublet structures and polarization relaxation in single quantum dots. *Physical Review B*, 62(24) :16840–16855, Dec 2000.
- [51] V. Mlinar and A. Zunger. Effect of atomic-scale randomness on the optical polarization of semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 79(11) :115416, Mar 2009.
- [52] E. L. Ivchenko. Fine structure of excitonic levels in semiconductor nanostructures. *physica status solidi (a)*, 164(1) :487–492, 1997.

- [53] I. Favero. *Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs*. PhD thesis, Paris VI, 2005.
- [54] 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. Klopff, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195315, May 2002.
- [55] T. Guillet. Exchange-induced splitting of radiative exciton levels in a single quantum wire. *Physica E*, 9(4) :686–693, April 2001.
- [56] L. Besombes, K. Kheng, and D. Martrou. Exciton and biexciton fine structure in single elongated islands grown on a vicinal surface. *Physical Review Letters*, 85(2) :425–428, Jul 2000.
- [57] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kummell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, and D. Hommel. Fine structure of biexciton emission in symmetric and asymmetric CdSe/ZnSe single quantum dots. *Physical Review Letters*, 82(8) :1780–1783, Feb 1999.
- [58] T. Belhadj, C. M. Simon, T. Amand, P. Renucci, B. Chatel, O. Krebs, A. Lemaître, P. Voisin, X. Marie, and B. Urbaszek. Controlling the polarization eigenstate of a quantum dot exciton with light. *Physical Review Letters*, 103(8) :086601, Aug 2009.
- [59] M. Abbarchi, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, and M. Gurioli. Magneto-optical properties of excitonic complexes in GaAs self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 81(3) :035334, Jan 2010.
- [60] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard, and A. Forchel. Hidden symmetries in the energy levels of excitonic 'artificialatoms'. *Nature*, 405(6789) :923–926, June 2000.
- [61] M. Combescot and M. A. Dupertuis. The carrier antibinding in quantum dots : a charge separation effect. *The European Physical Journal B*, 50(3) :459–464, April 2006.
- [62] B. Gerard, J. M. and Gayral. Strong purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities. *J. Lightwave Technol.*, 17(11) :2089, November 1999.
- [63] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, and Y. Yamamoto. Regulated and entangled photons from a single quantum dot. *Physical Review Letters*, 84(11) :2513–2516, Mar 2000.
- [64] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry Mieg, J. M. Gérard, and I. Abram. Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(18) :183601, Oct 2001.

- [65] C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot. *Physical Review B*, 66(4) :045308, Jul 2002.
- [66] R. M. Stevenson, R. M. Thompson, A. J. Shields, I. Farrer, B. E. Kardynal, D. A. Ritchie, and M. Pepper. Quantum dots as a photon source for passive quantum key encoding. *Physical Review B*, 66(8) :081302, Aug 2002.
- [67] S. M. Ulrich, S. Strauf, P. Michler, G. Bacher, and A. Forchel. Triggered polarization-correlated photon pairs from a single CdSe quantum dot. *Applied Physics Letters*, 83(9) :1848–1850, 2003.
- [68] Robert J. Young, R. Mark Stevenson, Paola Atkinson, Ken Cooper, David A. Ritchie, and Andrew J. Shields. Improved fidelity of triggered entangled photons from single quantum dots. *New Journal of Physics*, 8(2) :29, February 2006.
- [69] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 96(13) :130501, Apr 2006.
- [70] Gang Chen, N. H. Bonadeo, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, and L. J. Sham. Optically induced entanglement of excitons in a single quantum dot. *Science*, 289(5486) :1906–1909, September 2000.
- [71] J. Hours, P. Senellart, E. Peter, A. Cavanna, and J. Bloch. Exciton radiative lifetime controlled by the lateral confinement energy in a single quantum dot. *Physical Review B*, 71(16) :161306, Apr 2005.
- [72] P. Senellart, E. Peter, J. Hours, A. Cavanna, and J. Bloch. Few particle effects in the emission of short-radiative-lifetime single quantum dots. *Physical Review B*, 72(11) :115302, Sep 2005.
- [73] X. Li, Y. Wu, D. Steel, D. Gammon, T. H. Stievater, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham. An all-optical quantum gate in a semiconductor quantum dot. *Science*, 301(5634) :809–811, August 2003.
- [74] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. *Quantum computation and quantum information*. Ed. Cambridge, 2000.
- [75] P. A. Dalgarno, J. M. Smith, B. D. Gerardot, A. O. Govorov, K. Karrai, P. M. Petroff, and R. J. Warburton. Dark exciton decay dynamics of a semiconductor quantum dot. *physica status solidi (a)*, 202(14) :2591–2597, 2005.
- [76] D. W. Snoke, J. Hübner, W. W. Rühle, and M. Zundel. Spin flip from dark to bright states in InP quantum dots. *Physical Review B*, 70(11) :115329, Sep 2004.

- [77] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, and J. M. Gérard. Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 86(8) :1634–1637, Feb 2001.
- [78] K. Roszak, V. M. Axt, T. Kuhn, and P. Machnikowski. Exciton spin decay in quantum dots to bright and dark states. *Physical Review B*, 76(19) :195324, Nov 2007.
- [79] J. Johansen, B. Julsgaard, S. Stobbe, J. M. Hvam, and P. Lodahl. Probing long-lived dark excitons in self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 81(8) :081304, Feb 2010.
- [80] M. Winger, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu, and A. Imamoglu. Quantum dot spectroscopy using cavity quantum electrodynamics. *Physical Review Letters*, 101(22) :226808, Nov 2008.
- [81] D. W. Snoke, W. W. Rühle, K. Köhler, and K. Ploog. Spin flip of excitons in GaAs quantum wells. *Physical Review B*, 55(20) :13789–13794, May 1997.
- [82] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaître, J. A. Gaj, and P. Voisin. Optical alignment and polarization conversion of the neutral-exciton spin in individual InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 77(16) :161305, Apr 2008.
- [83] X. L. Wang and V. Voliotis. Epitaxial growth and optical properties of semiconductor quantum wires. *Journal of Applied Physics*, 99(12) :121301, 2006.
- [84] D. Crisinel, M. A. Dupertuis, and E. Kapon. Vectorial electromagnetic modes in V-shaped dielectric waveguides with application to quantum wire devices. *Optical and Quantum Electronics*, 31(9) :797–812, October 1999.
- [85] <http://ab-initio.mit.edu/wiki/index.php/Meep>.
- [86] X. L. Wang, M. Ogura, and H. Matsuhata. Temperature dependent photoluminescence investigation of AlGaAs/GaAs quantum wires grown by flow rate modulation epitaxy. *Applied Physics Letters*, 67(24) :3629–3631, 1995.
- [87] X. L. Wang, S. Furue, M. Ogura, V. Voliotis, M. Ravarolo, A. Enderlin, and R. Grousseau. Ultrahigh spontaneous emission extraction efficiency induced by evanescent wave coupling. *Applied Physics Letters*, 94(9) :091102, 2009.
- [88] J. M. Gerard, J. B. Genin, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouché, and F. Barthe. Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. *Journal of Crystal Growth*, 150(150) :351, 1995.
- [89] C. Cohen-Tannoudji. Atomes "habillés" par des photons optiques ou de radiofréquence. *Journal de physique*, 32(10) :C5a–11, 1971.
- [90] M. Fox. *Quantum optics, An introduction*. Ed. Cambridge, 2006.

- [91] M. U. Wehner, M. H. Ulm, and M. Wegener. Scanning interferometer stabilized by use of pancharatnam's phase. *Opt. Lett.*, 22(19) :1455–1457, October 1997.
- [92] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Ed. Cambrige, 1999.
- [93] G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*. Ed. ellipses, 1997.
- [94] L. Mandel and E. Wolf. *Optical coherence and quantum optics*. Ed. Cambridge, 1995.
- [95] J. C. A. Barata and W. F. Wreszinski. Strong-coupling theory of two-level atoms in periodic fields. *Physical Review Letters*, 84(10) :2112–2115, Mar 2000.
- [96] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. CNRS éditions, 2001.
- [97] W. H. Zurek. Decoherence, einselection, and the quantum origins of the classical. *Reviews of Modern Physics*, 75(3) :715–775, May 2003.
- [98] B. R. Mollow. Power spectrum of light scattered by two-level systems. *Physical Review*, 188(5) :1969–1975, Dec 1969.
- [99] B. R. Mollow. Absorption and emission line-shape functions for driven atoms. *Physical Review A*, 5(3) :1522–1527, Mar 1972.
- [100] H. J. Kimble and L. Mandel. Theory of resonance fluorescence. *Physical Review A*, 13(6) :2123–2144, Jun 1976.
- [101] X. Xu, B. Sun, P. R. Berman, D. G. Steel, A. S. Bracker, D. Gammon, and L. J. Sham. Coherent optical spectroscopy of a strongly driven quantum dot. *Science*, 317(5840) :929–932, August 2007.
- [102] S. J. Boyle, A. J. Ramsay, A. M. Fox, M. S. Skolnick, A. P. Heberle, and M. Hopkinson. Beating of exciton-dressed states in a single semiconductor InGaAs/GaAs quantum dot. *Physical Review Letters*, 102(20) :207401+, May 2009.
- [103] R. Compton, A. Filin, D. A. Romanov, and R. J. Levis. Observation of broadband time-dependent rabi shifting in microplasmas. *Physical Review Letters*, 103(20) :205001, Nov 2009.
- [104] H. C. Torrey. Transient nutations in nuclear magnetic resonance. *Physical Review*, 76(8) :1059–1068, Oct 1949.
- [105] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Ed. Dover, 1987.
- [106] L. C. Andreani, G. Panzarini, and J. M. Gérard. Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory. *Physical Review B*, 60(19) :13276–13279, Nov 1999.

- [107] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Damping of exciton rabi rotations by acoustic phonons in optically excited InGaAs/GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 104(1) :017402, Jan 2010.
- [108] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K. Shih. Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 72(3) :035306, Jul 2005.
- [109] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots. *Physical Review B*, 66(8) :081306, Aug 2002.
- [110] P. Machnikowski and L. Jacak. Resonant nature of phonon-induced damping of rabi oscillations in quantum dots. *Physical Review B*, 69(19) :193302, May 2004.
- [111] J. Forstner, C. Weber, J. Danckwerts, and A. Knorr. Phonon-assisted damping of rabi oscillations in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 91(12) :127401, Sep 2003.
- [112] J. Bellessa, V. Voliotis, T. Guillet, D. Roditchev, R. Grousson, X. L. Wang, and M. Ogura. Carrier scattering by auger mechanism in a single quantum wire. *The European Physical Journal B*, 21(4) :499–505, June 2001.
- [113] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, and H. Mariette. Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 76(4) :045331, Jul 2007.
- [114] A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Yu, and F. Henneberger. Optical and magnetic anisotropies of the hole states in stranski-krastanov quantum dots. *Physical Review B*, 70(24) :241305, Dec 2004.
- [115] D. N. Krizhanovskii, A. Ebbens, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson. Individual neutral and charged $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -GaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy. *Physical Review B*, 72(16) :161312, Oct 2005.
- [116] S. Stuffer, P. Ester, A. Zrenner, and M. Bichler. Ramsey fringes in an electric-field-tunable quantum dot system. *Physical Review Letters*, 96(3) :037402, Jan 2006.
- [117] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando. Exciton rabi oscillation in a single quantum dot. *Physical Review Letters*, 87(24) :246401, Nov 2001.

- [118] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, and C. K. Shih. Interplay of rabi oscillations and quantum interference in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 88(8) :087401, Feb 2002.
- [119] X. Marie, P. Le Jeune, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, M. Paillard, and R. Planel. Coherent control of the optical orientation of excitons in quantum wells. *Physical Review Letters*, 79(17) :3222–3225, Oct 1997.
- [120] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D. S. Katzer, and D. G. Steel. Coherent optical control of the quantum state of a single quantum dot. *Science*, 282(5393) :1473–1476, November 1998.
- [121] Y. Wu, X. Li, L. M. Duan, D. G. Steel, and D. Gammon. Density matrix tomography through sequential coherent optical rotations of an exciton qubit in a single quantum dot. *Physical Review Letters*, 96(8) :087402, Feb 2006.
- [122] T. Takagahara. Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 60(4) :2638–2652, Jul 1999.
- [123] A. Vagov, V. M. Axt, T. Kuhn, W. Langbein, P. Borri, and U. Woggon. Non-monotonous temperature dependence of the initial decoherence in quantum dots. *Physical Review B*, 70(20) :201305, Nov 2004.
- [124] B. Krummheuer, V. M. Axt, and T. Kuhn. Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195313, May 2002.
- [125] G. Cassaboïs. Origines et limites du modèle de l’atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs. *hdr*, 2006.
- [126] E. A. Zibik, T. Grange, B. A. Carpenter, R. Ferreira, G. Bastard, N. Q. Vinh, P. J. Phillips, M. J. Steer, M. Hopkinson, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick, and L. R. Wilson. Intersublevel polaron dephasing in self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 77(4) :041307, Jan 2008.
- [127] T. Grange, R. Ferreira, and G. Bastard. Polaron relaxation in self-assembled quantum dots : Breakdown of the semiclassical model. *Physical Review B*, 76(24) :241304, Dec 2007.
- [128] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître, and J. M. Gérard. Strong electron-phonon coupling regime in quantum dots : Evidence for everlasting resonant polarons. *Physical Review Letters*, 83(20) :4152–4155, Nov 1999.
- [129] E. Burovski, H. Fehske, and A. S. Mishchenko. Exact treatment of exciton-polaron formation by diagrammatic monte carlo simulations. *Physical Review Letters*, 101(11) :116403, Sep 2008.

- [130] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission. *Physical Review B*, 63(15) :155307, Mar 2001.
- [131] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassaboïs, C. Voisin, C. Delalande, Ph Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gerard. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature Physics*, 2(11) :759–764, October 2006.
- [132] H. Kamada and T. Kutsuwa. Broadening of single quantum dot exciton luminescence spectra due to interaction with randomly fluctuating environmental charges. *Physical Review B*, 78(15) :155324, Oct 2008.
- [133] N. F. Ramsey. A molecular beam resonance method with separated oscillating fields. *Physical Review*, 78(6) :695–699, Jun 1950.