



HAL
open science

Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semiconductrices

Hai-Son Nguyen

► **To cite this version:**

Hai-Son Nguyen. Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semiconductrices. Autre [cond-mat.other]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT: . tel-00659615

HAL Id: tel-00659615

<https://theses.hal.science/tel-00659615v1>

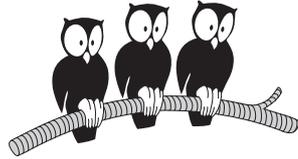
Submitted on 13 Jan 2012

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

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

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE

Département de Physique



THÈSE de DOCTORAT de L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Physique des Solides

présentée par

Hai Son NGUYEN

Pour obtenir le titre de
DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

**Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes
quantiques semiconductrices**

Soutenue le 09 décembre 2011 devant le jury composé de :

M.	Guillaume CASSABOIS	Directeur de thèse
Mlle.	Carole DIEDERICHS	Membre invité
M.	Jean-Michel GÉRARD	Rapporteur
M.	Aristide LEMÂITRE	Examineur
M.	Jean-François ROCH	Examineur
M.	Bernhard URBASZEK	Rapporteur
Mme.	Valia VOLIOTIS	Examineur

Table des matières

Introduction	5
1 Boîtes quantiques InAs/GaAs	11
1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques	12
1.1.1 Confinement des porteurs dans les semiconducteurs	12
1.1.2 Fabrication des boîtes quantiques	15
1.1.3 Etats électroniques	18
1.1.4 Interaction avec la lumière - Transitions optiques inter-bandes	22
1.1.5 Spectre d'absorption	22
1.2 Complexes excitoniques	23
1.2.1 Notion d'exciton	23
1.2.2 Les complexes excitoniques d'une boîte quantique	26
1.2.3 Energie de liaison	28
1.2.4 Structure fine	30
1.3 Mécanismes de relaxation	32
1.3.1 Relaxation de population	33
1.3.2 Relaxation de cohérence	38
1.4 Excitation résonnante vs excitation non-résonnante	43
1.4.1 Excitation non-résonnante : la fin du modèle de système à deux niveaux	43
1.4.2 Excitation résonnante : la clé pour manipuler un atome artificiel	45
1.5 Conclusion	46
2 Aspects expérimentaux	47
2.1 Échantillon	48
2.1.1 Plan de boîtes quantiques InAs/GaAs	48
2.1.2 Micro-cavité planaire AlAs/AlGaAs	48
2.1.3 Influence de la micro-cavité sur l'émission des boîtes quan- tiques	50
2.2 Micro-photoluminescence	51
2.2.1 Micro-photoluminescence en géométrie confocale	51
2.2.2 Micro-photoluminescence sous excitation fibrée	52

2.2.3	Dispositifs de détection	54
2.2.4	Différentes expériences de micro-photoluminescence	55
2.3	Spectroscopie par transformée de Fourier	56
2.3.1	Principe	56
2.3.2	Montage optique	57
2.4	Mesure des corrélations en intensité	58
2.4.1	Principe	59
2.4.2	Montage optique	62
2.4.3	Construction d'un histogramme par la carte d'acquisition	63
2.5	Photoluminescence résolue en temps	64
2.5.1	Principe	64
2.5.2	Montage optique	64
2.6	Mesures préliminaires de caractérisation	66
2.6.1	Spectre de PL non-résonnante	66
2.6.2	Spectre de PLE non-résonnante	70
2.6.3	Photoluminescence non-résonnante résolue en temps	71
2.6.4	Mesures de corrélations du deuxième ordre	72
2.7	Conclusion	74
3	Boîtes quantiques uniques sous excitation résonnante	75
3.1	Approche théorique	76
3.1.1	Rayonnement dipolaire d'un système à deux niveaux sous excitation résonnante	76
3.1.2	Equations de Bloch optiques	80
3.1.3	Intensité intégrée spectralement de l'émission résonnante	81
3.1.4	Fonction de corrélation de premier ordre et spectre de l'émission résonnante	84
3.1.5	Fonction de corrélation de deuxième ordre et le dégrouement de photons à l'excitation résonnante	88
3.1.6	Résultats en dehors de la limite radiative	90
3.2	Résultats expérimentaux et discussions	93
3.2.1	Spectres de photoluminescence sous excitation quasi-résonnante et résonnante	93
3.2.2	Spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante	94
3.2.3	Etude en puissance d'excitation	95
3.2.4	Mesures du temps de vie radiatif	97
3.2.5	Fonction de corrélation du premier ordre - Spectre de l'émission résonnante	100
3.2.6	Fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre de l'émission résonnante	105
3.2.7	Etude en fonction de la température - Elargissement et déphasage à la résonance	107
3.2.8	Structure fine et influence de l'environnement électrostatique	109

3.3	Conclusion	112
4	Excitation résonnante contrôlée par un gate optique	115
4.1	Phénoménologie de l'effet de gate optique	116
4.1.1	Résultats sans gate optique	116
4.1.2	Contrôle de l'émission résonnante par un gate optique . . .	121
4.2	Modèle théorique	126
4.2.1	Hypothèses générales	126
4.2.2	Limite à très faible puissance de gate - Modèle poissonien .	128
4.2.3	Cas général - Modèle de population aléatoire (MPA) . . .	131
4.3	Etudes expérimentales de l'effet de gate optique	133
4.3.1	Intensité d'émission résonnante versus puissance du gate optique	133
4.3.2	Energie d'émission résonnante versus puissance du gate . .	142
4.3.3	Etude de la dynamique de charges dans les phases transitoires	147
4.3.4	Auto-corrélation de photons	156
4.4	Retour vers le système à deux niveaux	163
4.4.1	Préambule	163
4.4.2	Mesures du temps de vie radiatif	163
4.4.3	Etudes en puissance d'excitation résonnante - Mesure du temps de cohérence	165
4.4.4	Spectre d'émission à très faible puissance d'excitation ré- sonnante	166
4.4.5	Mesure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux . . .	167
4.4.6	Etudes en polarisation	168
4.5	Conclusion	170
	Conclusion générale	171
A	Système à deux niveaux sous excitation résonnante	175
A.1	Solutions exactes des équations de Bloch optiques $T_2 \neq 2T_1$	176
A.1.1	Equations de Bloch optique dans le cas général	176
A.1.2	Solution en régime stationnaire - Calculs d'intensité	176
A.1.3	Solution analytique exacte	177
A.2	Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$. . .	180
A.2.1	Théorème de régression quantique	180
A.2.2	Application du théorème de régression quantique pour cal- culer $g^{(1)}(\tau)$	181
A.2.3	Spectre d'émission résonnante	183
A.3	Calcul de la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$	185
A.4	Spectre d'émission résonnante dans le cadre de l'atome habillé . .	186

B Mesures de la fonction de corrélation de premier ordre et spectres d'émission résonnante	189
B.1 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$	189
B.2 Spectres d'émission résonnante	190
C Expérience de la dynamique de charges dans les phases transitoires	193
C.1 Principe	193
C.2 Montage électronique et optique	194
C.3 Construction d'un histogramme par l'oscilloscope	194
Bibliographie	197

Introduction

Dans les années 80, les progrès technologiques dans le domaine de la croissance d'hétérostructures ont vu l'émergence d'un nouveau type de structures semiconductrices de taille nanométrique, où les porteurs sont confinés dans les trois directions de l'espace. Il s'agit des boîtes quantiques semiconductrices, également surnommées "atomes artificiels". L'origine de ce surnom vient de la discrétisation du spectre énergétique induite par le confinement tridimensionnel des porteurs dans ces systèmes. Depuis le premier résultat expérimental de spectroscopie de boîtes quantiques uniques obtenu par J.-Y. Marzin *et al.* en 1994 [1], l'étude de ces nano-objets est devenue un domaine de recherche très important dans la communauté des physiciens de la matière condensée. Du point de vue fondamental, l'analogie entre une boîte quantique et un atome individuel a conduit à l'utilisation des boîtes quantiques uniques dans des expériences qui étaient initialement réalisées pour des atomes individuels, en particulier celles d'optique quantique sur des atomes en cavité électromagnétique [2–6]. La réalisation de ces expériences en physique de la matière condensée a notamment permis la mise en évidence de phénomènes similaires à ceux d'un système atomique à deux niveaux, telles que :

- **Source de photons uniques** : P. Michler *et al.* a montré expérimentalement en 2000 que les boîtes quantiques uniques sont des sources de photons uniques [7], où la statistique d'émission des photons obéit à une loi sub-poissonienne. Ce résultat fait directement référence à l'expérience historique de H. J. Kimble *et al.* en 1977 réalisées sur des atomes de sodium [2], qui a montré pour la première fois la nature quantique de l'émission des atomes individuels.
- **Oscillations de Rabi** : Dans le régime de couplage fort entre un système à deux niveaux et le mode optique d'un laser d'excitation résonnante, l'évolution temporelle de la population de l'état fondamental et de l'état excité du système à deux niveaux suit une loi sinusoïdale, où la pulsation est imposée par la force du couplage [3,8]. Ce phénomène, appelé "*oscillations de Rabi*", a été observé sur la transition fondamentale d'une boîte quantique sous excitation quasi-résonnante effectuée sur un des états excités de la boîte [9], et sous excitation résonnante dans des expériences de transmission différentielle [10] ou de photo-courant [11]. Il est ainsi possible de préparer la boîte quantique dans une superposition d'états entre l'état fondamental et l'état excité de la boîte [11, 12].

- **Effet Purcell** : Dans le régime de couplage faible entre un système à deux niveaux et le mode d'une cavité électromagnétique, le taux d'émission spontanée du système à deux niveaux est augmenté du fait de la présence de la cavité [5, 13]. Cet effet, appelé "*effet Purcell*" est observé sur les boîtes quantiques uniques en micro-piliers [14] et en cavité de cristal photonique [15].
- **Splitting de Rabi** : Dans le régime de couplage fort entre un système à deux niveaux et le mode d'une cavité électromagnétique, le couplage fort induit une levée de dégénérescence entre les deux états résonnants et il y a apparition de deux nouveaux états propres qui sont des états mixtes "lumière-matière" [16]. La levée de dégénérescence des états propres à la résonance, appelée "*splitting de Rabi*", a été observée pour la première fois sur des atomes en cavité en 1992 [6], sur des boîtes quantiques en micro-piliers en 2004 [17], et sur des boîtes quantiques en cavité de cristal photonique en 2007 [18].

Les études de boîtes quantiques semiconductrices sont non-seulement intéressantes pour la recherche fondamentale, mais aussi pour ses applications prometteuses dans le domaine de l'information quantique [19]. En effet, les photons uniques émis par une boîte quantique peuvent être exploités pour la réalisation de bits quantiques (i.e. qubits) qui sont les briques élémentaires du codage de l'information pour un futur ordinateur quantique [19] et en cryptographie quantique [20, 21]. La condition primordiale pour que ces photons puissent être utilisés en information quantique est leur indiscernabilité. En effet, les algorithmes d'information quantique ne sont valables que si les photons-qubits sont indiscernables, c'est-à-dire s'ils sont identiques et ne peuvent être différenciés l'un de l'autre, même en principe. Les travaux théoriques de M. Larqué *et al.* [22] ont montré que cette condition est équivalente à la condition $\frac{T_2}{2T_1} > \frac{1}{\sqrt{2}}$, où T_1 est le temps de vie radiatif de la boîte quantique, et T_2 le temps de cohérence. Le temps de cohérence T_2 fini du système est dû, d'une part au couplage de l'état excité de la boîte avec la fluctuation du champ électromagnétique du vide qui est par ailleurs à l'origine de la transition radiative, et d'autre part aux différents processus non-radiatifs dus au couplage de la boîte avec l'environnement électrostatique fluctuant [23] et le réservoir de phonons optiques et acoustiques [23–25]. La relation entre T_1 et T_2 est donnée par : $\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}$ [23] où la quantité T_2^* , appelée déphasage pur, caractérise la décohérence due aux processus non-radiatifs. En l'absence de processus non-radiatifs, on parle alors de la limite radiative où $T_2 = 2T_1$. Une fois cette limite atteinte, la condition d'indiscernabilité est automatiquement satisfaite.

La problématique de l'"atome artificiel" est de fait fragile car une boîte quantique ne peut être assimilée à un simple système à deux niveaux du fait de l'interaction avec la matrice cristalline. Il faut noter que la quasi-totalité des ex-

périences d'optique sur boîtes quantiques uniques sont réalisées sous excitation non-résonnante, où le laser d'excitation a une énergie supérieure à celle de la transition optique de l'émission de la boîte. Ce scénario d'excitation crée beaucoup de porteurs dans la matrice cristalline environnante. Une partie de ces porteurs contribue à l'environnement électrostatique fluctuant au voisinage de la boîte quantique qui est à l'origine de processus de décohérence de l'émission de la boîte. Par conséquent, la physique d'une boîte quantique sous excitation non-résonnante est très compliquée, et elle ne peut pas être modélisée par un simple système à deux niveaux. Dans ce contexte, les travaux précédents du groupe d'optique cohérente et non-linéaire du Laboratoire Pierre Aigrain tels que ceux de C. Kammerer [24], d'I. Favero [25] et d'A. Berthelot [23] ont montré l'influence du réservoir de phonons et de l'environnement électrostatique fluctuant sur l'émission d'une boîte quantique unique. Ces travaux ont mis en évidence la décohérence de l'émission due au couplage avec les phonons, et aux dynamiques de piégeage et dépiégeage des porteurs dans les défauts au voisinage de la boîte. La limite radiative n'est donc jamais atteinte à cause de l'existence de ces processus non-radiatifs. Néanmoins, la condition d'indiscernabilité peut être satisfaite en exploitant l'effet Purcell. En effet, C. Santori *et al.* [15] ont utilisé l'effet Purcell pour diminuer le temps de vie radiatif T_1 afin d'obtenir une source de photons uniques indiscernables. Cependant, l'information portée par un qubit (i.e. la phase) est rapidement perdue car le temps de cohérence T_2 n'est pas amélioré. Pour répondre à cette problématique, il est intéressant de travailler à basse température pour vider le réservoir de phonons et d'exciter la boîte quantique à la résonance pour ne pas créer de porteurs à l'extérieur de la boîte. La difficulté technique d'une expérience d'excitation résonnante est de s'affranchir de la diffusion parasite du laser qui est superposée au signal d'émission de la boîte dans un montage confocal de micro-photoluminescence standard.

La première expérience d'excitation résonnante sur boîtes quantiques uniques a été réalisée en 2007 par A. Muller *et al* [26] sur des boîtes quantiques InAs/GaAs en microcavité planaire. Ces travaux ont montré pour la première fois dans une expérience de spectroscopie que la transition fondamentale d'une boîte quantique peut être entièrement traitée comme un système à deux niveaux. Suite à ces résultats, le phénomène d'oscillations de Rabi du régime de couplage fort entre le laser résonnant et une boîte quantique a été observé en photoluminescence résonnante pour la première fois en 2008 par R. Melet *et al* [27] sur des boîtes quantiques GaAs au cœur d'un guide d'onde unidimensionnel. A notre connaissance, jusqu'à présent, la technique d'excitation résonnante de boîte quantique unique est maîtrisée, en plus des groupes précédemment cités, par le groupe de P. Michler [28] sur des boîtes quantiques InAs/GaAs en micropilier, par le groupe de M. Atatüre [29] sur des boîtes quantiques InAs/GaAs sous champs électrique et magnétique, et par le groupe de A. Imamoglu [30] sur des boîtes quantiques InAs/GaAs en cavité de cristal photonique. Pour les trois premiers groupes, la

technique utilisée pour s'affranchir de la diffusion parasite du laser est de découpler spatialement l'excitation de la détection. Quant aux groupes de M. Attatüre et de A. Immamoglu, la diffusion du laser est supprimée en plaçant sur la détection un analyseur croisé par rapport à la polarisation du laser d'excitation. Bien que les échantillons de chacun de ces groupes soient très différents, la limite radiative n'est jamais atteinte, même à très basse température [26–30]. Cela suggère qu'il existe encore un environnement électrostatique fluctuant non nul, même dans le cas d'une excitation résonnante, où le laser photo-crée des porteurs uniquement dans la boîte quantique [31].

Dans ce travail de thèse, nous présentons une expérience d'excitation résonnante de boîtes quantiques en microcavité planaire dont le montage expérimental est similaire à celui de A. Muller *et al.* [26]. Nos résultats montrent qu'il subsiste effectivement un environnement électrostatique fluctuant au voisinage des boîtes quantiques sous excitation résonnante. Cet environnement électrostatique dégrade non seulement la cohérence de l'émission résonnante, mais peut également conduire à une complète inhibition de l'émission résonnante pour un grand pourcentage de boîtes. L'inhibition de l'émission résonnante qui a aussi été observée par différents groupes [30, 32] constitue donc un problème inattendu pour des expériences d'excitation strictement résonnante. Pour résoudre ce problème, nous proposons une solution qui repose sur le contrôle optique de l'émission résonnante des boîtes quantiques par un laser non-résonnant [33]¹. Ce contrôle optique, que nous appellerons par la suite "gate optique", permet de restituer l'émission résonnante de l'ensemble des boîtes quantiques du fait du contrôle de l'état de charge de la boîte quantique dans un régime de capture de charges ultra-lent qui n'a jamais été étudié auparavant.

Le plan du manuscrit est le suivant :

1. **Chapitre 1** : Nous rappelons dans un premier temps les propriétés générales des boîtes quantiques semiconductrices : la discrétisation du spectre des états électroniques due au confinement des porteurs dans une boîte, la règle de sélection des transitions optiques inter-bandes dans le couplage avec la lumière, et le spectre théorique d'absorption. Nous introduisons ensuite la notion d'exciton dans les structures semiconductrices ainsi que les différents complexes excitoniques d'une boîte quantique unique (exciton neutre, exciton chargé, bi-exciton). Les énergies de liaison et la structure fine de chaque complexe excitonique sont également présentées. Après la description des complexes excitoniques d'une boîte quantique, nous discutons les mécanismes de relaxation de ces complexes, c'est à dire les relaxations de population et de cohérence. Pour la relaxation de population, nous détaillons les mécanismes de capture de charges dans une boîte quantique assistés par

1. Dans la référence [30], sur nos conseils, le groupe de A. Immamoglu a utilisé l'effet du gate optique pour restituer l'émission résonnante.

phonons optiques ou par effet Auger. Pour la relaxation de cohérence, nous introduisons le formalisme de la matrice densité, et les différentes sources de décohérence telles que le couplage avec les phonons et l'environnement électrostatique de la boîte. A la fin du chapitre, nous comparons l'excitation résonnante avec l'excitation non-résonnante, confirmant ainsi que l'excitation résonnante est a priori indispensable pour valider le scénario d'"atome artificiel" pour des applications dans le domaine de l'information quantique.

2. **Chapitre 2** : Nous présentons notre échantillon de boîtes quantiques InAs/GaAs en microcavité planaire ainsi que les différents montages optiques de spectroscopie de boîte quantique unique utilisés pendant ce travail de thèse : montage d'excitation résonnante par une fibre optique introduite à l'intérieur du cryostat, montage de type Hanbury-Brown and Twiss pour les mesures de corrélation de photons, montage de spectroscopie par transformée de Fourier, et montage de photoluminescence résolue en temps. Nous terminons le chapitre par des mesures préliminaires de caractérisation sous excitation non-résonnante, où nous mettons en évidence l'existence d'accepteurs non-intentionnels et de trous résiduels dans l'échantillon.
3. **Chapitre 3** : Dans la première partie, nous revisitons la théorie de l'émission résonnante d'un système à deux niveaux. En particulier, nous montrons que cette émission résonnante est composée d'une partie appelée cohérente dont la cohérence est imposée par celle du laser d'excitation, et d'une partie appelée incohérente dont la cohérence est imposée par le temps de cohérence T_2 du système à deux niveaux. Dans la deuxième partie, nous présentons des résultats expérimentaux obtenus sur la boîte quantique appelée QD1. La limite radiative n'est toujours pas atteinte puisque la valeur extrapolée à température nulle de T_2 est inférieure à $2T_1$. L'originalité de ce chapitre par rapport aux résultats de A. Muller [26] repose sur la caractérisation des composantes incohérente et cohérente de l'émission résonnante.
4. **Chapitre 4** : Nous présentons les résultats expérimentaux sur la boîte quantique QD2, où nous observons une inhibition de l'émission résonnante de l'exciton neutre et une apparition de l'émission résonnante de l'exciton chargé positivement. Ces deux observations s'interprètent par la présence de trous résiduels dans le niveau fondamental de la boîte. Nous montrons qu'un gate optique non-résonnant peut contrôler l'état de charge du niveau fondamental de la boîte et induire une restitution complète de l'émission résonnante de l'exciton neutre. Les études sur le signal de résonance, la dynamique du gate et la statistique d'émission de la boîte quantique sont présentées en fonction de la puissance du gate optique sur plusieurs ordres de grandeurs. Nous expliquons l'effet du gate et ajustons les données expérimentales par un modèle de population aléatoire qui décrit les différents mécanismes de captures de charges dans la boîte.

Chapitre 1

Boîtes quantiques InAs/GaAs

Dans ce premier chapitre, nous allons introduire les propriétés générales des boîtes quantiques semiconductrices InAs/GaAs dont la fabrication repose sur les techniques de croissance par épitaxie. La discrétisation du spectre énergétique d'une boîte quantique lui donne le surnom d'"atome artificiel" - un candidat potentiel pour les sources de photons uniques à l'état solide. Pourtant, dans un scénario d'excitation non-résonnante, la considération d'une boîte quantique comme un système à deux niveaux atomique apparaît trop simplifiée; en plus, les processus non-radiatifs de relaxation entre états électroniques tendent à dégrader la cohérence temporelle des photons émis, et nous rappellerons quels sont les mécanismes mis en jeu. Une excitation strictement résonnante avec la transition optique fondamentale apparaît comme un enjeu fondamental pour étudier la boîte quantique en tant un "atome artificiel" et contrôler la cohérence son émission.

Sommaire

1.1	Propriétés générales des boîtes quantiques	12
1.1.1	Confinement des porteurs dans les semiconducteurs . .	12
1.1.2	Fabrication des boîtes quantiques	15
1.1.3	Etats électroniques	18
1.1.4	Interaction avec la lumière - Transitions optiques interbandes	22
1.1.5	Spectre d'absorption	22
1.2	Complexes excitoniques	23
1.2.1	Notion d'exciton	23
1.2.2	Les complexes excitoniques d'une boîte quantique . . .	26
1.2.3	Energie de liaison	28
1.2.4	Structure fine	30
1.3	Mécanismes de relaxation	32
1.3.1	Relaxation de population	33
1.3.2	Relaxation de cohérence	38
1.4	Excitation résonnante vs excitation non-résonnante .	43

1.4.1	Excitation non-résonnante : la fin du modèle de système à deux niveaux	43
1.4.2	Excitation résonnante : la clé pour manipuler un atome artificiel	45
1.5	Conclusion	46

1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques

1.1.1 Confinement des porteurs dans les semiconducteurs

1.1.1.a Porteurs dans les semiconducteurs : la masse effective et la notion du trou

Le mouvement des électrons dans un solide est souvent étudié à la fois dans l'approximation de Born-Oppenheimer (négligeant le mouvement des noyaux) et dans l'approximation de Hartree-Fock (considérant un électron unique dans le champ moyen créé par les autres électrons et les noyaux) [34, 35]. Avec ces approximations, le hamiltonien caractérisant le mouvement d'un électron s'écrit sous la forme :

$$H_0 = \frac{\vec{p}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) \quad (1.1)$$

où le potentiel $V(\vec{r})$ possède les symétries du réseau cristallin. Le théorème de Bloch prédit alors que les états propres correspondent à des fonctions d'ondes du type :

$$\phi_{n\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n\vec{k}}(\vec{r})e^{i\vec{k}\vec{r}} \quad (1.2)$$

où n est l'indice de bande, \vec{k} le nombre quantique translationnel. La composante $u_{n\vec{k}}$ s'appelle la partie atomique, qui est une fonction périodique de mêmes symétries que le cristal. L'énergie propre $E_{n\vec{k}}$ correspondant à la fonction d'onde $\phi_{n\vec{k}}(\vec{r})$ dépend de \vec{k} et n . Ses variations en fonction de \vec{k} à n donné définissent la relation de dispersion de la bande n , i.e. la *structure de bande* du cristal.

L'équation de Schrödinger effective pour la partie atomique s'écrit :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m_e} + \hbar \frac{\vec{k}\vec{p}}{m_e} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) \right) u_{n\vec{k}} = E_{n\vec{k}} u_{n\vec{k}} \quad (1.3)$$

Pour calculer la structure de bande autour du point Γ (i.e. $\vec{k} = 0$), nous utilisons la méthode $\vec{k}\vec{p}$ [36] qui part des solutions $E_{n\vec{0}}$ et $u_{n\vec{0}}$ au point Γ :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) \right) u_{n\vec{0}} = E_{n\vec{0}} u_{n\vec{0}} \quad (1.4)$$

Nous pouvons alors obtenir $E_{n\vec{k}}$ et $u_{n\vec{k}}$ grâce à un calcul perturbatif [36] :

$$E_{n\vec{k}} = E_{n\vec{0}} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2}{m_e} \sum_{n' \neq n} \frac{|\langle u_{n\vec{0}}(\vec{r}) | \vec{k}\vec{p} | u_{n'\vec{0}}(\vec{r}) \rangle|^2}{E_{n\vec{0}} - E_{n'\vec{0}}} \quad (1.5)$$

et

$$u_{n\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n\vec{0}}(\vec{r}) + \frac{\hbar}{m_e} \sum_{n' \neq n} \frac{\langle u_{n\vec{0}}(\vec{r}) | \vec{k}\vec{p} | u_{n'\vec{0}}(\vec{r}) \rangle}{E_{n\vec{0}} - E_{n'\vec{0}}} u_{n'\vec{0}}(\vec{r}) \quad (1.6)$$

Cette méthode de calcul nous permet d'introduire la notion de masse effective m_e^* de la bande n. Dans l'approximation de la masse effective, la structure de bandes au voisinage du point Γ est assimilée à une parabole :

$$E_{n\vec{k}} \approx E_{n\vec{0}} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e^*} \quad (1.7)$$

Les propriétés électroniques sont ainsi décrites à l'aide de quasi-particules dont les masses sont celles des masses effectives associées aux différentes bandes. Cependant, lorsqu'un électron de valence est excité et passe par exemple dans la bande de conduction, l'état quantique du système reste encore assez compliqué avec (2N-1) électrons dans la bande de valence. Pour éviter cette complexité, la bande de valence privée d'un électron est décrite à l'aide d'une nouvelle quasi-particule, le trou dont les grandeurs physiques caractéristiques (i.e. charge, masse effective) sont de signes opposés à celles de l'électron manquant. Avec cette interprétation, l'état quantique du système lorsqu'un électron passe de la bande de valence à la bande de conduction est équivalent à la création d'une paire d'électron-trou (voir la figure 1.1).

Bande d'énergie	masse effective m_e^*	masse effective m_h^*
Bande de conduction	0.067 m_e	
Bande de trous lourds	-0.45 m_e	0.45 m_e
Bande de trous légers	-0.082 m_e	0.082 m_e
Bande de trous SO	-0.154 m_e	0.154 m_e

TABLE 1.1 – Masse effective d'électron et de trou dans les différentes bandes de GaAs

1.1.1.b De 3D à 0D : discrétisation du spectre

La mécanique quantique prévoit une discrétisation du spectre énergétique lorsque le mouvement d'une particule est confiné à une échelle plus petite que

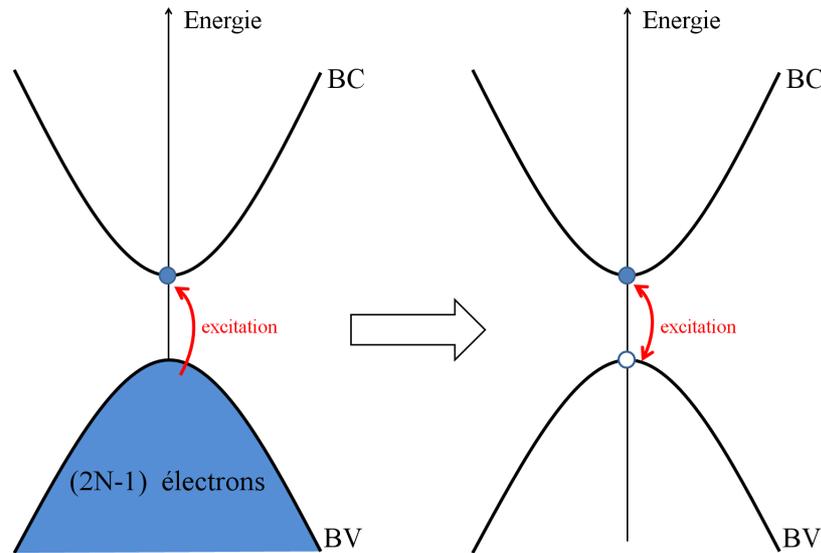


FIGURE 1.1 – Le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction peut être interprété comme la création d'une paire d'électron-trou.

la longueur d'onde de De Broglie. Pour le cas des électrons dans des semiconducteurs, cette longueur est définie dans l'approximation de la masse effective par :

$$\lambda_B = \frac{2\pi\hbar}{\sqrt{2m_e^*k_B T}} \quad (1.8)$$

où T est la température du système.

Suivant le degré de confinement (le nombre de directions suivant lesquelles le mouvement des électrons est restreint), nous avons trois types d'hétérostructures semiconductrices à confinement quantique :

1. **Puits quantique** : le confinement est suivant une direction de l'espace, et les électrons ont un mouvement libre dans les deux autres directions, comme un gaz 2D. La relation de dispersion dans cette structure est de la forme $E = E_n + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_e^*}$ où E_n est l'énergie de confinement et $k_{//}$ le vecteur d'onde dans le plan. Il s'agit d'un système 2D dont la densité d'état a une forme en marches d'escalier (voir la figure 1.2).
2. **Fil quantique** : le confinement est suivant deux directions de l'espace, le mouvement libre est unidimensionnel. La relation de dispersion devient $E = E_n + \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m_e^*}$ où E_n est l'énergie de confinement et k_x le vecteur d'onde associé au mouvement libre unidimensionnel. Il s'agit d'un système 1D dont la densité d'état est donnée par des termes en $1/\sqrt{E - E_n}$ (voir la figure 1.2).

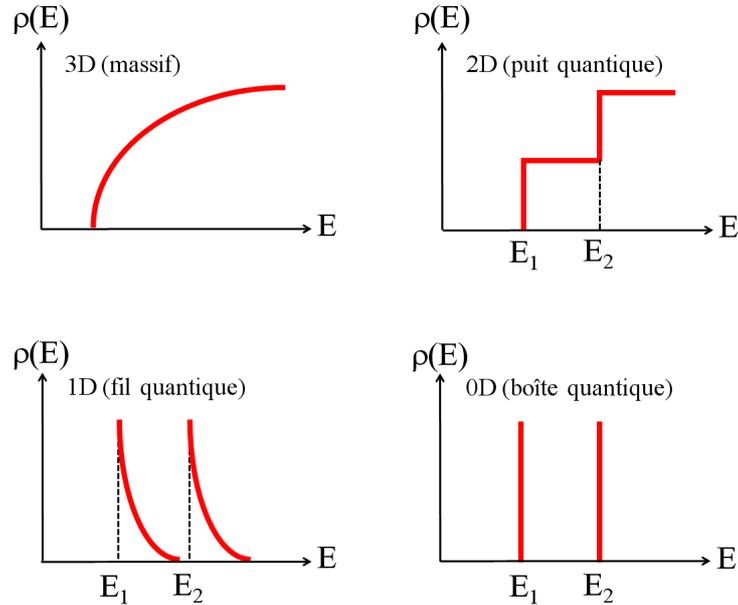


FIGURE 1.2 – Densités d'états électroniques dans différentes structures semiconductrices à faibles dimensions. Nous remarquons que dans les boîtes quantiques, la densité d'états est discrétisée comme dans les atomes.

3. **Boîte quantique** : le confinement est suivant les trois directions de l'espace, il n'y a plus de quasi-continuum associé à une invariance par translation. Il s'agit d'un système 0D dont la densité d'états est constituée de deltas de Dirac (voir la figure 1.2), très similaire à celle d'un atome. Le confinement tridimensionnel du type atomique et la suppression des continua de dispersion distinguent fondamentalement les boîtes quantiques des puits quantiques et des fils quantiques.

1.1.2 Fabrication des boîtes quantiques

1.1.2.a Etat de l'art

L'idée générale pour confiner les porteurs (électrons, trous) dans un espace donné est de modifier le potentiel cristallin par la fabrication d'une hétérostructure. Dans le cas des semiconducteurs, le potentiel de confinement correspond à la barrière de potentiel créée par la différence d'énergie des extrema de bandes. Nous pouvons ainsi confiner les porteurs dans un semiconducteur A lorsque celui-ci est inséré dans un semiconducteur B de plus grand gap. C'est la caractéristique géométrique du matériau A (un plan 2D, un fil 1D ou un point 0D) qui détermine la nature du confinement (puits quantique, fil quantique ou boîte quantique). A l'heure actuelle, il y a deux grandes familles de boîtes quantiques : les

boîtes quantiques auto-organisées fabriquées dans le mode de croissance Stranski-Krastanov [37] et les nanocristaux fabriqués par voie chimique [38] :

Boîtes quantiques par croissance auto-organisée : Les premières boîtes quantiques ont été réalisées en 1985 [39] avec l'observation d'une croissance de nano-îlots de type Stranski-Krastanov [37] lors d'un dépôt épitaxial d'une couche très contrainte d'InAs sur un substrat GaAs. Ces boîtes quantiques sont caractérisées par un très bon confinement bien que les paramètres de croissance soient difficiles à contrôler. Dans ces boîtes quantiques, le spectre d'émission peut atteindre une largeur de l'ordre de quelques μeV , mais la géométrie, la position et la fréquence d'émission de la boîte ne sont pas complètement maîtrisées. Plusieurs techniques sont proposées pour obtenir des croissances où la position et la taille des boîtes quantiques peuvent être contrôlées [40, 41]. Bien que ces techniques tendent à dégrader les propriétés optiques avec une largeur homogène des transitions qui peut augmenter jusqu'à quelques meV [41], les derniers développements concernant des boîtes quantiques pyramidales inversées permettent d'obtenir des largeurs homogènes de l'ordre de $20 \mu\text{eV}$ [42]. Malgré le manque de contrôle total dans la fabrication, les boîtes quantiques auto-organisées jouent toujours un rôle central dans la recherche sur les émetteurs de photons uniques car elles peuvent être facilement intégrées dans des structures photoniques [43, 44] et aussi dans des circuits logiques [45, 46] à base de semiconducteurs. La fabrication des boîtes quantiques auto-organisées peut se faire à la fois par épitaxie par jets moléculaires (Molecular Beam Epitaxy ou MBE) ou par déposition chimique organo-métallique en phase vapeur (Metal Organic Chemical Vapor Deposition ou MOCVD). La première méthode permet d'avoir un certain contrôle sur la croissance des boîtes (densité moyenne, longueur d'onde moyenne d'émission) tandis que la deuxième méthode permet d'avoir des croissances beaucoup plus rapides.

Nanocristaux : L'histoire de la synthèse des nanocristaux commence au Moyen-Age avec la fabrication des vitraux colorés. Au XX^e siècle, cette méthode empirique est d'abord reprise pour la fabrication de filtres optiques. Les recherches sur la croissance cristalline de semiconducteurs II-VI dans les années 1980 [47] ont conduit à une nouvelle méthode de synthèse colloïdale en milieu organique [38]. Il s'agit de nanocristaux de forme coeur-coquille dans lesquels les charges sont confinées dans un coeur de rayon ajustable jusqu'à quelques nanomètres. Ces boîtes quantiques sont synthétisées par voie chimique, et contrairement à la fabrication des boîtes quantiques auto-organisées par épitaxie, la synthèse des nanocristaux peut atteindre une faible dispersion en taille, inférieure à 5% [48]. Un autre avantage des nanocristaux par rapport aux boîtes quantiques auto-organisées est la capacité d'émettre des photons uniques jusqu'à température ambiante [49]. En termes d'application, ces nanocristaux sont utilisés en tant que sources de lumière accordables pour l'imagerie biologique [50, 51] ou comme milieu actif pour les LEDs et les lasers [50]. Cependant, il est plus difficile d'intégrer ces boîtes

quantiques dans des dispositifs photoniques à cause de leur synthèse en solution. En particulier, les nanocristaux présentent un phénomène de *blinking* (i.e. clignotement) [49] où une ionisation des nanocristaux peut bloquer complètement son émission.

1.1.2.b Synthèse des boîtes quantiques auto-organisées InAs/GaAs par MBE

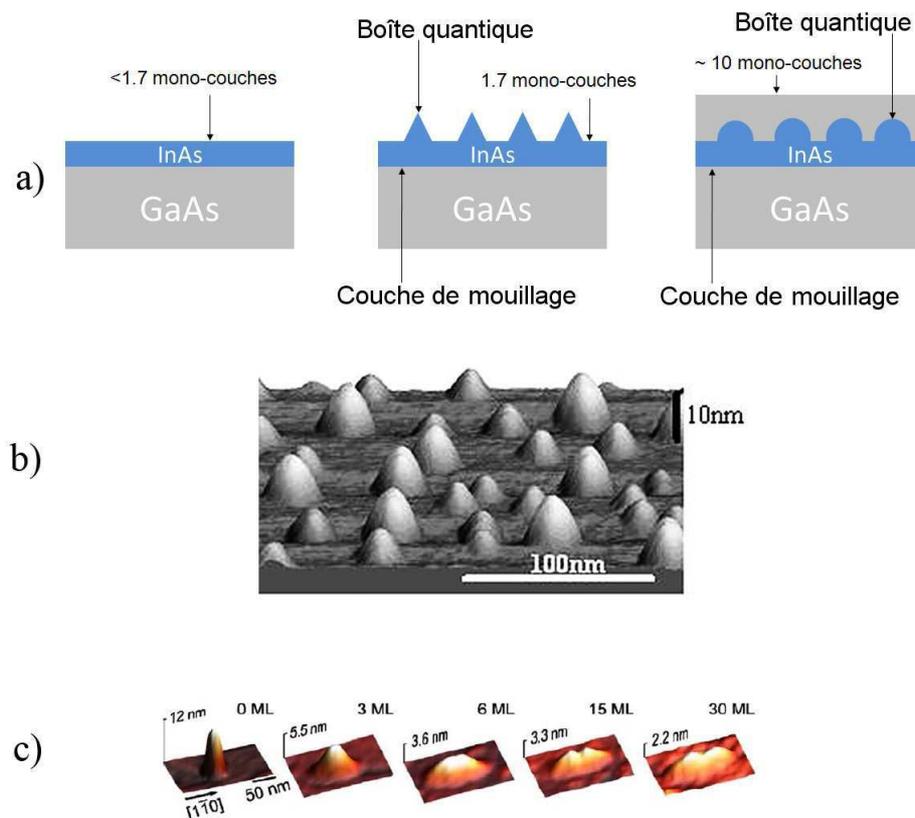


FIGURE 1.3 – (a) Les différentes étapes d’une croissance MBE de boîtes quantiques InAs/GaAs. (b) Image AFM d’une couche d’îlots d’InAs sur un substrat GaAs. Cette image est réalisée par Nanostructure Materials & Devices Laboratory de University of Southern California. (c) Série d’images AFM de boîtes quantiques lors du recouvrement par plusieurs mono-couches GaAs [52].

Les boîtes quantiques que nous allons étudier dans cette thèse sont des boîtes quantiques InAs/GaAs fabriquées par épitaxie par jet moléculaire (MBE). Les différentes étapes de cette croissance (voir figure 1.3(a)) sont les suivantes :

1. Une couche d’InAs est déposée par MBE sur un substrat de GaAs. Lorsque la couche d’InAs est encore très mince (<1.7 mono-couches en moyenne),

elle va avoir le même paramètre de maille que celui de GaAs, bien que le désaccord de maille entre les matériaux massifs soit d'environ 7%.

2. Une fois que l'épaisseur d'InAs dépasse 1.7 mono-couches, la contrainte accumulée atteint un seuil et la couche d'InAs va relaxer en formant des îlots nanométriques de forme conique (figure 1.3(b)). Un îlot typique a un rayon de $\sim 20\text{nm}$ et une hauteur de $\sim 3\text{nm}$ avec une densité $10^9 - 10^{11} \text{cm}^{-2}$ [53]. Il s'agit d'une boîte quantique unique. La couche 2D d'InAs (qui est en fait un puits quantique) s'appelle la couche de mouillage (Wetting Layer ou WL).
3. L'échantillon est ensuite recouvert par une couche de GaAs afin de passiver la surface du dépôt d'InAs. L'épaisseur de cette couche de GaAs (capping layer) est de l'ordre au minimum d'une dizaine de mono-couches. Pendant cette croissance, les îlots d'InAs vont s'étaler et prendre une forme de lentilles aplaties (figure 1.3(c)).

La croissance par MBE peut être visualisée *in situ* par diffraction électronique (Reflection High Energy Electron Diffraction ou RHEED) [54, 55]. Cette visualisation permet d'observer la nucléation des îlots d'InAs et ainsi d'aboutir à un contrôle de la densité des boîtes quantiques (le jet d'InAs est arrêté à la densité souhaitée). La vitesse de croissance (le flux d'InAs), la température et la durée d'une éventuelle interruption peuvent fortement influencer la taille, la forme et l'énergie d'émission des boîtes quantiques [56, 57]. En particulier, la forme des boîtes quantiques peut changer suivant l'épaisseur de la capping layer en GaAs [58](figure 1.3c). Par ailleurs, un recuit de l'échantillon permet, par interdiffusion, de contrôler finement la hauteur des boîtes et ainsi de décaler l'émission de la boîte vers le bleu $\sim 200\text{meV}$ [59].

1.1.3 Etats électroniques

1.1.3.a Structure de bande d'InAs et de GaAs

Dans le cadre de cette thèse, nous n'étudions que des transitions électroniques inter-bandes. Il s'agit de la recombinaison radiative d'une paire électron-trou dont la description ne nécessite que la connaissance des propriétés électroniques des matériaux au voisinage de leur gap. Les structures de bande d'InAs et de GaAs peuvent être calculées par la méthode $\vec{k}\vec{p}$ à la fois dans le cas du semiconducteur massif sans contrainte [35] et dans le cas avec contrainte [60]. Cette structure de bande est représentée sur la figure 1.4 et nous pouvons expliquer ses caractéristiques essentielles par les arguments suivants :

1. La structure de type Zinc-blende (double réseau cubique à faces centrées) d'InAs et de GaAs contient 8 électrons de valence par maille élémentaire. A cause de la dégénérescence de spin, ces 8 électrons de valence occupent 4 bandes de plus basse énergie dont les symétries sont celles d'une orbitale s

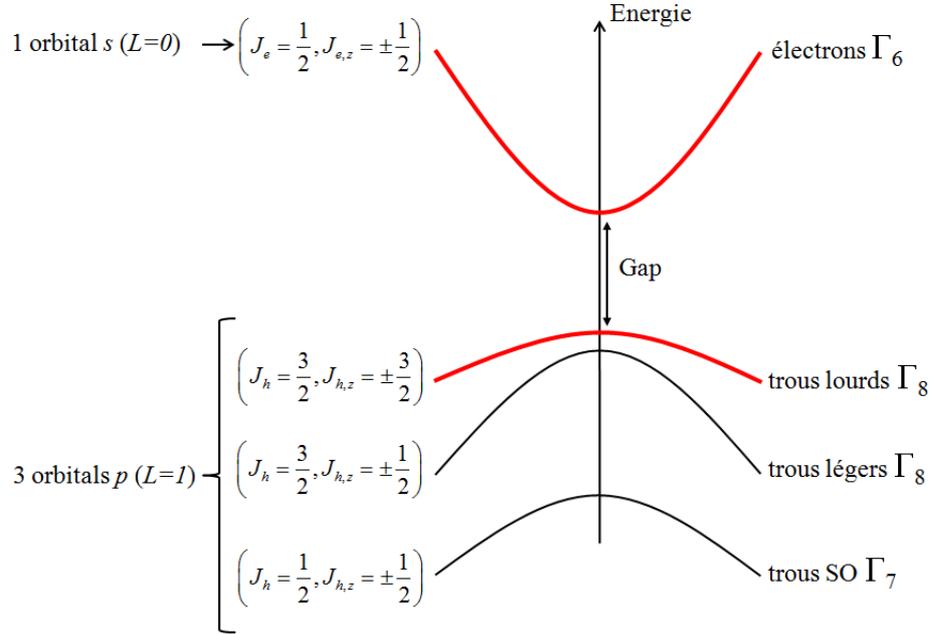


FIGURE 1.4 – Structure de bande d'InAs et de GaAs. La première bande de conduction est la bande Γ_6 d'électrons, la dernière bande de valence est la bande Γ_8 de trous lourds.

et de trois orbitales p. La bande de type s ($L = 0$) est la première bande de valence, les trois bandes de type p ($L = 1$) sont les trois dernières bandes de valence.

2. Le couplage spin-orbite lève la dégénérescence de ces trois bandes de valence : la bande Γ_7 ($J_h = \frac{1}{2}$) se trouve à une énergie plus basse que les deux bandes Γ_8 ($J_h = \frac{3}{2}$). La bande Γ_7 est appelée la bande SO (i.e. *Split-Off*) dont la levée de dégénérescence par rapport aux bandes Γ_8 vaut Δ_{SO} (0.34 eV pour GaAs et 0.41 eV pour InAs).
3. Dans le cas de puits quantiques, la relation de dispersion de la section 1.1.1.b peut s'écrire sous la forme : $E(k_{//}) = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \left[\left(\frac{n\pi}{L} \right)^2 + k_{//}^2 \right]$ où L est l'épaisseur du puits. Comme l'énergie de confinement E_n est inversement proportionnelle à m_e^* , les bandes de trous lourds et légers ne sont plus dégénérées. Cette levée de dégénérescence aboutit à une bande de trous lourds à plus haute énergie.
4. Dans le cas des boîtes quantiques auto-organisées, la contrainte due au désaccord de maille entre le substrat GaAs et la couche de mouillage InAs modifie leurs structures de bande. Au voisinage du point Γ , la bande de conduction Γ_6 n'est pas couplée avec les bandes de valence, et la contrainte ne fait que décaler Γ_6 d'une énergie proportionnelle à la contrainte hydrostatique. Cependant, les bandes de valences Γ_8 sont non seulement décalées

d'une énergie proportionnelle à la contrainte hydrostatique mais aussi séparées d'une énergie proportionnelle à la contrainte biaxiale. Par conséquent, l'écart entre la bande de trous lourds et la bande de trous légers est a priori beaucoup plus important pour les boîtes que pour les puits quantiques.

Nous ne considérons alors que la bande Γ_6 d'électrons et la bande Γ_8 de trous lourds pour les transitions inter-bandes. Avec la dégénérescence de spin, nous avons donc deux états propres d'électron et deux états propres de trous dans la base $|J_{e/h}, J_{e/h,z}\rangle$:

$$\begin{aligned} |e \uparrow\rangle &= \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle & |h_h \uparrow\rangle &= \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle \\ |e \downarrow\rangle &= \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle & |h_h \downarrow\rangle &= \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \end{aligned} \quad (1.9)$$

1.1.3.b Etats électroniques confinés dans une boîte quantique InAs/GaAs

En première approximation, nous négligeons l'assymétrie de l'îlot autour de l'axe de croissance, et tout effet de gradient de concentration entre l'îlot en InAs et la barrière en GaAs. Une boîte quantique InAs/GaAs peut alors être modélisée comme une lentille aplatie ou un cône tronqué d'InAs pur plongé dans une matrice de GaAs (figure 1.5). Avec cette modélisation, le potentiel de confinement est à symétrie cylindrique $V_{QD}(\rho, z)$. Un îlot d'InAs contient environ 10^4 atomes, alors $V_{QD}(\rho, z)$ varie très lentement à l'échelle atomique. Cette variation lente permet d'écrire la fonction d'onde des électrons sous une forme très similaire à celle des fonctions de Bloch (voir équation 1.2). Il s'agit de l'*approche de la fonction enveloppe* [61] où la partie onde plane $e^{i\vec{k}\vec{r}}$ qui correspond à l'invariance par translation dans un cristal massif est remplacée par une fonction $\psi_n(\vec{r})$ lentement variable qui correspond au confinement $V_{QD}(\rho, z)$. Cette approche remplace donc la fonction d'onde $\phi_{n\vec{k}}(\vec{r})$ de l'équation 1.2 par :

$$\tilde{\phi}_{n\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n\vec{k}}(\vec{r})\psi_n(\vec{r}) \quad (1.10)$$

où la fonction enveloppe $\psi_n(\vec{r})$ est solution de l'équation de Shrödinger :

$$\left(\frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e^*} + V_{QD}(\rho, z) \right) \psi_n(\vec{r}) = E_n \psi_n(\vec{r}) \quad (1.11)$$

Le hamiltonien effectif de l'équation 1.11 est invariant par rotation autour de l'axe Oz, de sorte que le moment cinétique l_z est un bon nombre quantique. Les états électroniques confinés sont appelés S, P, D, F qui correspondent à $l_z = 0, 1, 2, 3$ comme la dénomination des états atomiques. Le nombre d'états liés dans une boîte quantique dépend de la profondeur du potentiel de confinement $V_{QD}(\rho, z)$; la plupart des boîtes quantiques InAs/GaAs n'ont que deux états S et P. Les états de conduction sont notés S_e, P_e, D_e, F_e et les états de trous S_h, P_h, D_h, F_h .

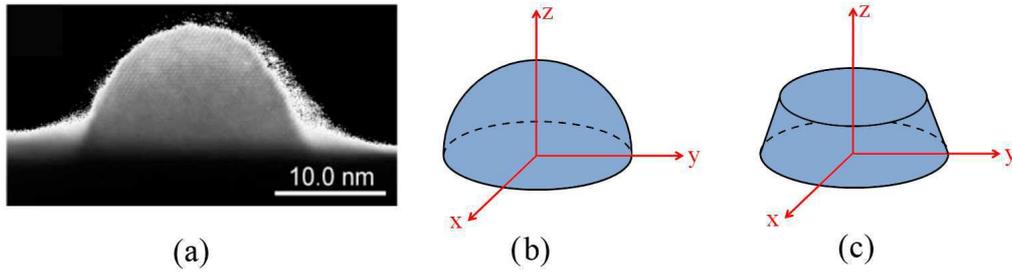


FIGURE 1.5 – (a) Image TEM d'une boîte quantique prise par IMS NRC Canada. (b) Modèle d'une boîte quantique en forme de lentille aplatie. (c) Modèle d'une boîte quantique en forme de cône tronqué.

1.1.3.c Densité d'états électroniques

Une boîte quantique auto-organisée InAs/GaAs n'est pas qu'un îlot d'InAs isolé, elle est posée sur la couche de mouillage (un puits quantique 2D d'InAs) dans un milieu massif GaAs. Les porteurs peuvent ainsi occuper les états de la barrière, les états de la couche de mouillage ou les états confinés de la boîte. Pour les états de valence et de conduction, il existe ainsi trois types de confinement différents. L'allure de la densité d'états électroniques d'un tel système est représentée sur la figure 1.6. Pour chaque type d'état, il y a un continuum 3D des états du GaAs massif dont la densité d'état est en racine carré de l'énergie, un continuum 2D des états de la couche de mouillage InAs de densité d'état constante (pour un puits quantique idéal) et puis les états discrets de la boîte quantique.

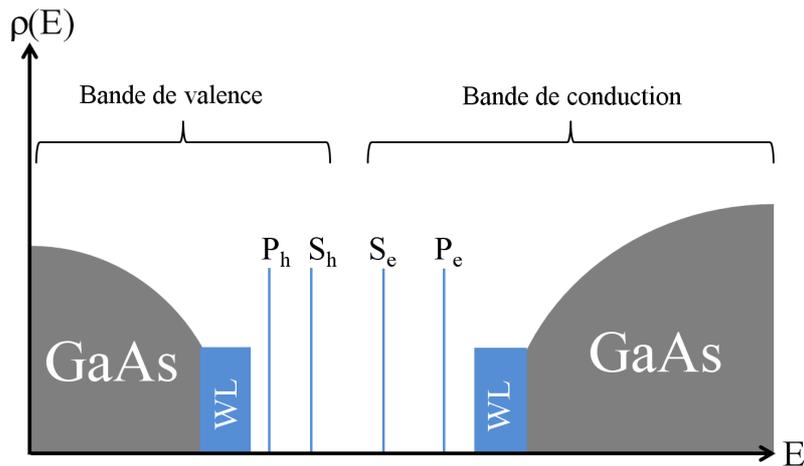


FIGURE 1.6 – Allure de la densité d'états électroniques d'une boîte quantique auto-organisée InAs/GaAs.

1.1.4 Interaction avec la lumière - Transitions optiques inter-bandes

Nous considérons la transition optique entre deux états discrets d'une boîte quantique unique en interaction avec la lumière. Dans l'*approche de la fonction enveloppe*, cette transition optique se fait entre un état initial $\tilde{\phi}_{i\vec{k}}(\vec{r}) = u_{i\vec{k}}(\vec{r})\psi_i(\vec{r})$ et un état final $\tilde{\phi}_{f\vec{k}}(\vec{r}) = u_{f\vec{k}}(\vec{r})\psi_f(\vec{r})$. L'élément de matrice de cette transition optique dans l'approximation semi-classique du couplage dipolaire est proportionnel à $\langle \tilde{\phi}_{i\vec{k}} | \vec{\epsilon} \vec{p} | \tilde{\phi}_{f\vec{k}} \rangle$ où $\vec{\epsilon}$ est la polarisation du champ électrique. Comme nous ne nous sommes intéressés qu'aux transitions inter-bandes (i.e. $i \neq f$), cet élément de matrice est égal à :

$$\langle \tilde{\phi}_{i\vec{k}} | \vec{\epsilon} \vec{p} | \tilde{\phi}_{f\vec{k}} \rangle = \underbrace{\vec{\epsilon} \langle u_{i\vec{k}} | \vec{p} | u_{f\vec{k}} \rangle}_{(1)} \underbrace{\int \psi_i^*(\vec{r}) \psi_f(\vec{r}) d^3\vec{r}}_{(2)} \quad (1.12)$$

Le terme (1) ne contient que les fonctions atomiques, il donne donc les mêmes règles de sélection que les transitions inter-bandes du milieu massif [36] :

$$M \equiv J_{e,z} + J_{h,z} = \pm 1 \quad (1.13)$$

Alors seulement les excitons $|e \uparrow, h_h \downarrow\rangle$ et $|e \downarrow, h_h \uparrow\rangle$ sont couplés avec la lumière. Il s'agit des *excitons brillants* pour lesquels $M = \pm 1$. Les deux autres excitons (i.e. $|e \uparrow, h_h \uparrow\rangle$ et $|e \downarrow, h_h \downarrow\rangle$) ne sont pas couplés avec la lumière ; ils s'appellent *excitons noirs* pour lesquels $M = \pm 2$. Ces règles de sélection peuvent s'appliquer pour les paires électrons-trous non seulement dans la boîte quantique mais aussi dans la couche de mouillage et dans la barrière.

Le terme (2) contient les fonctions enveloppes, il donne donc les règles de sélection associées au confinement dans la boîte quantique, qui ne s'appliquent que pour les paires électrons-trous confinées dans la boîte quantique. Ce terme est non nul seulement si les deux fonctions enveloppes ont la même symétrie : $(l_z)_f = (l_z)_i$. En conséquence, les seules transitions permises sont $1S_h - 1S_e$ (la recombinaison radiative entre un trou de l'état S_h et un électron de l'état S_e) et $1P_h - 1P_e$ (la recombinaison radiative entre un trou de l'état P_h et un électron de l'état P_e).

1.1.5 Spectre d'absorption

La figure 1.7 représente le calcul du spectre d'absorption d'une boîte quantique unique par Vasanelli *et al* [62]. Ce spectre théorique a une allure très proche des résultats expérimentaux de Toda [63] et Kammerer [24]. A partir du schéma de la densité d'états électroniques (figure 1.6) et des règles de sélection que nous venons d'établir, nous pouvons expliquer les différents transitions inter-bandes de ce spectre d'absorption :

1. Il y a deux résonances à basse énergie qui correspondent aux transitions $|1S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$ et $|1P_h - 1P_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$. Dans les deux cas, l'électron et le trou sont confinés dans la boîte quantique. La transition $|1S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$ est celle de plus basse énergie, d'où le nom de transition fondamentale.
2. Des transitions d'énergie plus élevée font intervenir des *états mixtes* entre un électron (trou) localisé dans la boîte quantique et un trou (électron) délocalisé dans la couche de mouillage ou dans la barrière. Par exemple : $1WL_h - 1S_e$ est un état de paire dont le trou est délocalisé dans la couche de mouillage et l'électron est localisé dans la boîte quantique sur l'état S_e .
3. A des énergies plus élevées (qui ne sont pas montrées dans la figure 1.7) apparaissent des transitions entre deux états de continuum. Il s'agit d'excitons complètement délocalisés dans la couche de mouillage (i.e. $1WL_h - 1WL_e$), ou dans la barrière (i.e. $1B_h - 1B_e$), ou mixte entre les deux (i.e. $1WL_h - 1B_e$ et $1B_h - 1WL_e$).

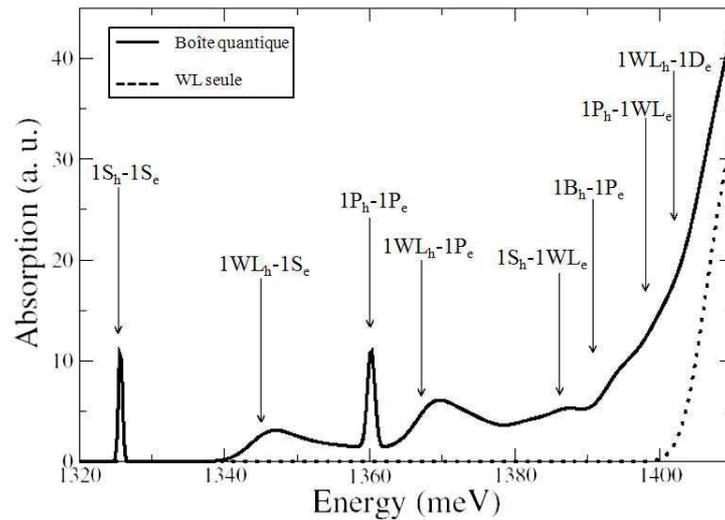


FIGURE 1.7 – Calcul du spectre d'absorption d'une boîte quantique unique (trait plein) et de la couche de mouillage seule (trait en pointillé) [62].

1.2 Complexes excitoniques

1.2.1 Notion d'exciton

1.2.1.a Exciton 3D

La promotion d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction lors d'une excitation est interprétée comme la création d'une paire d'électron-trou

dans l'approximation de la masse effective m_e^* et m_h^* (voir la section 1.1.1.a). Dans le matériau massif, l'électron et le trou peuvent se déplacer dans les trois directions de l'espace mais ils sont corrélés par interaction coulombienne. Ce système est similaire à celui de l'atome d'hydrogène. L'électron et le trou forment un complexe hydrogénoïde : l'*exciton*. Le mouvement du système à deux corps "électron-trou" peut se décomposer en deux parties :

1. **Le mouvement libre du centre de masse** $G(M, \vec{R})$ où $M = m_e^* + m_h^*$, $\vec{R} = \frac{(m_e^* \vec{r}_e + m_h^* \vec{r}_h)}{(m_e^* + m_h^*)}$. La fonction d'onde correspondante est une onde plane 3D :

$$\varphi_{libre}^{3D}(\vec{R}) = e^{i\vec{K}\vec{R}} \quad (1.14)$$

2. **Le mouvement de la particule réduite** $E(m, \vec{r})$ où $\frac{1}{m} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$, $\vec{r} = \vec{r}_e - \vec{r}_h$. La fonction d'onde correspondante est de type hydrogénoïde 1S, telle que :

$$\varphi_{coulomb}^{3D}(\vec{r}) = \sqrt{\frac{1}{\pi a_{3D}^3}} e^{-\frac{|\vec{r}|}{a_{3D}}} \quad (1.15)$$

Le rayon de Bohr de l'exciton 3D est donnée par $a_{3D} = a_0 \epsilon_r \frac{m_e}{m}$ où a_0 est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène (i.e. $a_0 = 0.529$) et ϵ_r est la constante diélectrique du matériau. Pour GaAs : $a_{3D} = 115$ [64]. L'énergie de liaison associée est donnée par :

$$E_l = -\frac{R_y^*}{n^2} \quad (1.16)$$

où n est un nombre entier, et le Rydberg excitonique $R_y^* = R_y \frac{m}{m_e \epsilon_r^2}$ avec $R_y = 13.6$ eV. Pour GaAs : $R_y^* = 4.7$ meV qui est très petit devant l'énergie du gap $E_g = 1.424$ eV, l'interaction coulombienne n'est alors qu'une correction de l'énergie d'exciton 3D par rapport à l'énergie du gap.

Dans l'approche de la fonction enveloppe, la fonction enveloppe excitonique est donnée par [61] :

$$\varphi^{3D}(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{V}} \varphi_{libre}^{3D}(\vec{R}) \varphi_{coulomb}^{3D}(\vec{r}) \quad (1.17)$$

où V est le volume du cristal. L'énergie de l'exciton 3D s'écrit :

$$E(\vec{K}, n) = E_g + E_l + \frac{\hbar \vec{K}^2}{2M} \quad (1.18)$$

Nous rappelons que dans l'approche de la fonction enveloppe, la fonction d'onde excitonique totale au point Γ est donnée par :

$$\tilde{\Phi}^{3D}(\vec{R}, \vec{r}) = u_{c0}(\vec{r}_e) \cdot u_{v0}(\vec{r}_h) \cdot \varphi^{3D} \quad (1.19)$$

1.2.1.b Exciton 2D

Dans le cas d'un puits quantique, une paire électron-trou est toujours corrélée par l'interaction coulombienne. La seule différence par rapport au cas d'un matériau massif est que son mouvement est restreint dans le plan de confinement (Oz). Ce confinement est décrit par deux fonctions enveloppes associées à l'électron et de trou : $\varphi_e(z)$ et $\varphi_h(z)$. Le mouvement dans le plan est aussi décomposé en un mouvement libre du centre de masse et un mouvement corrélé de la particule réduite. Les fonctions d'onde correspondantes sont :

$$\begin{aligned}\varphi_{libre}^{2D}(\vec{R}_{//}) &= e^{i\vec{K}_{//}\vec{R}_{//}} \\ \varphi_{coulomb}^{2D}(\vec{r}_{//}) &= \sqrt{\frac{1}{\pi a_{2D}^2}} e^{-\frac{|\vec{r}_{//}|}{a_{2D}}}\end{aligned}\quad (1.20)$$

où le Rayon de Bohr de l'exciton 2D est donné par [64] $a_{2D} = \frac{1}{2}a_{3D}$. Dans l'approche de la fonction enveloppe, la fonction enveloppe excitonique est donnée par [61] :

$$\boxed{\varphi^{2D}(\vec{R}, \vec{r}) = \frac{1}{\sqrt{S}} \varphi_e(z) \cdot \varphi_h(z) \cdot \varphi_{libre}^{2D}(\vec{R}_{//}) \cdot \varphi_{coulomb}^{2D}(\vec{r}_{//})} \quad (1.21)$$

où S est l'aire de la surface du puits quantique.

De même, nous déduisons la fonction d'onde excitonique totale au point Γ :

$$\tilde{\Phi}^{2D}(\vec{R}, \vec{r}) = u_{c0}(\vec{r}_e) \cdot u_{v0}(\vec{r}_h) \cdot \varphi^{2D} \quad (1.22)$$

Energie de liason d'exciton 2D pour le cas de l'exciton 1S (n=1) est quatre fois plus grande que celle d'exciton 3D [64]. Cependant, elle est encore très petite devant l'énergie du gap E_g . L'interaction coulombienne n'est alors qu'une correction de l'énergie d'exciton 2D par rapport à l'énergie du gap comme le cas d'exciton 3D.

Pour résumé, dans le cas d'un matériau massif ou d'un puits quantique, *les excitons sont complètement délocalisés dans le milieu 3D ou dans le plan de confinement*. Cette délocalisation est représentée par la partie $\varphi_{libre}^{3D}(\vec{R})$ (ou $\varphi_{libre}^{2D}(\vec{R}_{//})$ de la fonction enveloppe). Par conséquent, *il peut y avoir, en première approximation, un nombre macroscopique d'excitons dans un matériau massif ou dans un puits quantique*.

1.2.1.c "Pseudo" exciton 0D

En ce qui concerne les états discrets d'une boîte quantique InAs/GaAs, seule la transition optique qui correspond à la recombinaison $S_e - S_h$ est isolée spectralement du quasi-continuum d'états électroniques, à une distance de l'ordre d'au

moins 15 meV [1.7]. Une paire électron-trou peut être injectée dans ces niveaux discrets l'aide d'une excitation optique non-résonnante, d'une excitation thermique ou d'une injection de charge par effet tunnel. Par abus de langage, nous continuerons d'appeler *exciton* un état de paire électron-trou dans une boîte quantique. Cependant, il y a des différences fondamentales entre ces *pseudo* excitons et les excitons 3D, 2D que nous avons présentés dans la section précédente :

- Les porteurs sont très localisés à cause du confinement tridimensionnel dans la boîte quantique, et les excitons 0D aussi. D'après le principe de Pauli, il y a au maximum un électron (trou) pour un état quantique ; le niveau S_e (S_h) peut donc avoir jusqu'à deux électrons (trous) de spins opposés. Alors contrairement aux excitons 3D et 2D qui peuvent être a priori macroscopiquement dégénérés, *il y a au plus deux excitons dans une boîte quantique.*
- Les paires électron-trou dans un milieu 3D ou 2D sont corrélées par interaction coulombienne et c'est ce couplage qui impose la correction en énergie d'un exciton 3D ou 2D par rapport à l'énergie du gap E_g . Cependant, dans le cas d'une boîte quantique, l'énergie de liaison due à l'interaction coulombienne entre électron et trou n'est qu'une correction mineure (de l'ordre de quelques meV) en comparaison de l'énergie de confinement dans la boîte (de l'ordre d'une centaine de meV).

Dans la section suivante, nous allons étudier toutes les configurations excitoniques possibles pour un nombre donné d'électrons et de trous injectés dans une boîte quantique.

1.2.2 Les complexes excitoniques d'une boîte quantique

1.2.2.a Exciton neutre :

Il s'agit du cas abordé jusqu'ici où un seul électron et un seul trou sont injectés dans la boîte quantique. En première approximation, l'exciton neutre est quatre fois dégénéré car l'électron et le trou peuvent avoir deux spins possibles (figure 1.8). Comme mentionné plus haut (voir partie 1.2.1), il n'y a que deux excitons qui peuvent interagir avec la lumière (i.e. *excitons brillants*) et qui correspondent au cas où l'électron et le trou ont des spins de signes opposés. La recombinaison radiative de cette paire électron-trou s'effectue à l'énergie de la transition optique fondamentale $|1S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$.

1.2.2.b Exciton chargé :

Un exciton chargé peut être vu comme un exciton neutre avec une charge supplémentaire. L'exciton chargé positif X^+ (i.e. deux trous et un électron) et

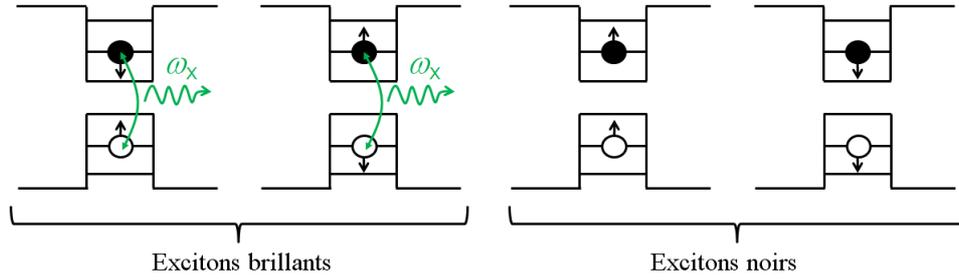


FIGURE 1.8 – Schéma des différents états de charge de l'exciton neutre.

l'exciton chargé négatif X^- (i.e. un trou et deux électrons) sont chacun deux fois dégénérés (figure 1.9). Après recombinaison d'une paire électron-trou, l'état final correspond à un trou dans l'état S_h pour X^+ , et un électron dans l'état S_e pour X^- . Ces recombinaisons correspondent aux transitions $|2S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |1S_h - 0S_e\rangle$ et $|1S_h - 2S_e\rangle \rightarrow |0S_h - 1S_e\rangle$. L'énergie du photon émis par cette recombinaison radiative est différente de celle de l'exciton neutre à cause de la différence des deux énergies de liaison comme nous allons le détailler dans la section suivante.

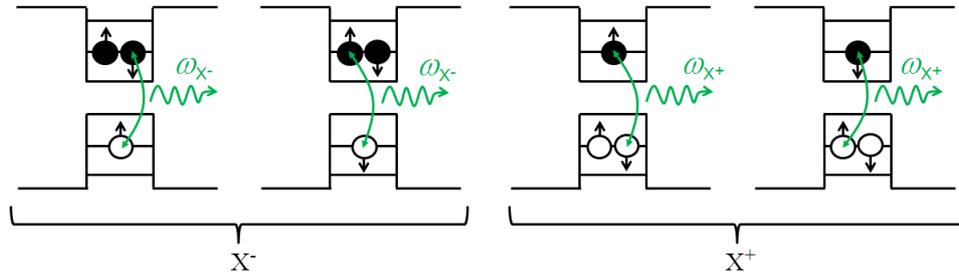


FIGURE 1.9 – Schéma des différents états de charge de l'exciton chargé.

1.2.2.c Biexciton :

Le biexciton XX est l'état où deux électrons et deux trous sont piégés dans la boîte quantique. Il n'existe qu'un état de biexciton car il est composé de deux électrons et deux trous appariés, autrement dit, de deux excitons brillants appariés. La boîte quantique peut alors émettre consécutivement deux photons liés aux deux recombinaisons possibles d'exciton brillant (figure 1.10). Le premier photon provient de la transition $|2S_h - 2S_e\rangle \rightarrow |1S_h - 1S_e\rangle$, ce qui sera appelé par abus de langage émission du biexciton ; le deuxième photon est associé à la transition $|1S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$, i.e. la simple émission d'un exciton neutre. Dans cette *cascade biexciton-exciton*, les photons ne sont pas émis à la même énergie à cause des différentes énergies de liaison comme nous allons le détailler ci-dessous.

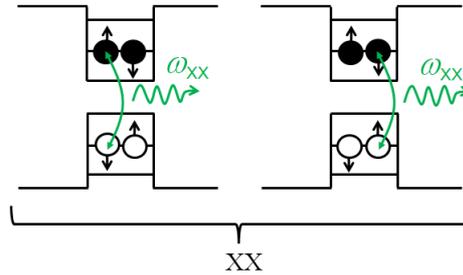


FIGURE 1.10 – Schéma des deux recombinaisons possibles pour le biexciton.

1.2.3 Energie de liaison

Les énergies des photons émis lors de la désexcitation des états X , X^\pm et XX ne sont pas les mêmes bien qu'il s'agisse à chaque fois de la recombinaison d'une paire électron-trou formée sur les états S_e et S_h . En effet, ces énergies diffèrent à cause de l'énergie de liaison des complexes correspondants qui est la somme des interactions coulombiennes attractives et répulsives. Les interactions coulombiennes dans une boîte quantique peuvent être classées en trois catégories (voir figure 1.11) :

1. **Termes d'interaction coulombienne directe** : il s'agit des intégrales coulombiennes directes entre les fonctions d'onde de deux charges (i.e. électron ou trou) confinées dans la boîte. On distingue trois termes J_{ee} , J_{eh} , J_{hh} , chacun de l'ordre de 20 meV, qui correspondent respectivement à l'interaction coulombienne électron-électron, électron-trou et trou-trou. Ces termes sont responsables, en première approximation, de la levée de dégénérescence entre les photons émis lors de la désexcitation des états X , X^\pm et XX .
2. **Termes de corrélation** : ces termes de correction δ^{corr} sont calculés lorsque la nature fermionique des porteurs dans la boîte quantique sont pris en considération pour réécrire la fonction d'onde de X^\pm et XX sous forme de déterminants de Slater. Cette correction est de l'ordre de quelques meV mais elle est essentielle pour expliquer la possibilité d'avoir $E_{XX} < E_X$ qui est souvent observée expérimentalement.
3. **Termes d'échange** : cette dernière correction δ^{ech} correspond à l'interaction d'échange entre paires dans une boîte quantique. Elle est de l'ordre d'une centaine de μeV et ne modifie pas la hiérarchie spectrale des photons émis par les complexes X , X^\pm et XX . Cette contribution est par contre essentielle pour expliquer la structure fine de l'exciton neutre (voir la section suivante).

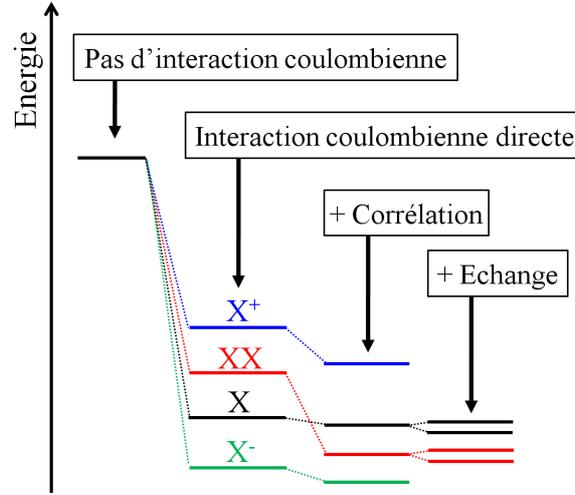


FIGURE 1.11 – *Energies de recombinaison radiative des complexes excitoniques en tenant compte des différents termes d'interaction coulombienne.*

D'une manière formelle, les énergies des complexes excitoniques s'écrivent [65] :

$$\begin{cases} E_X^* &= (\mathcal{E}_e - \mathcal{E}_h) + J_{eh} + \delta_X^{corr} + \delta_X^{ech} \\ E_{X^+}^* &= (\mathcal{E}_e - 2\mathcal{E}_h) + 2J_{eh} + J_{hh} + \delta_{X^+}^{corr} + \delta_{X^+}^{ech} \\ E_{X^-}^* &= (2\mathcal{E}_e - \mathcal{E}_h) + 2J_{eh} + J_{ee} + \delta_{X^-}^{corr} + \delta_{X^-}^{ech} \\ E_{XX}^* &= (2\mathcal{E}_e - 2\mathcal{E}_h) + 4J_{eh} + J_{ee} + J_{(hh)} + \delta_{XX}^{corr} + \delta_{XX}^{ech} \end{cases} \quad (1.23)$$

où $\mathcal{E}_e(\mathcal{E}_h)$ est l'énergie d'un électron (trou) dans l'état $S_e(S_h)$ sans compter la présence des autres charges.

Par conséquent, les énergies des photons émis lors de la désexcitation des états X, X^\pm et XX sont données par :

$$\begin{cases} E_X = \hbar\omega_X &= E_X^* \\ E_{X^+} = \hbar\omega_{X^+} &= E_{X^+}^* + \mathcal{E}_h \\ E_{X^-} = \hbar\omega_{X^-} &= E_{X^-}^* - \mathcal{E}_e \\ E_{XX} = \hbar\omega_{XX} &= E_{XX}^* - E_X \end{cases} \quad (1.24)$$

Schliwa *et al* ont calculé théoriquement les énergies de liaisons de X, X^\pm et XX dans des boîtes quantiques $InGa_{1-x}As/GaAs$ de différentes géométries [65]. Ces travaux montrent a priori 24 possibilités différentes pour le spectre des excitations X, X^\pm et XX . Cependant, seulement deux cas sont observés expérimentalement par différents groupes [66–75] : $[E_{X^-} < E_X < E_{XX} < E_{X^+}]$ et $[E_{X^-} < E_{XX} < E_X < E_{X^+}]$. Ces observations sont en accord avec les calculs de Schliwa pour les boîtes quantiques de géométrie en pyramide tronquée (figure 1.12).

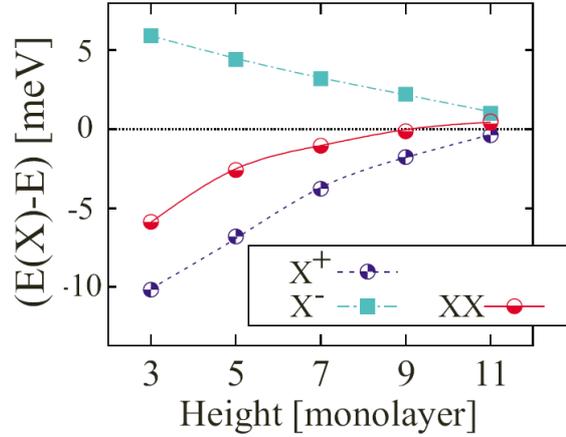


FIGURE 1.12 – Calcul des énergies de recombinaison radiative des complexes excitoniques de boîtes quantiques $InGa_{1-x}As/GaAs$ pyramidales tronquées [65].

1.2.4 Structure fine

1.2.4.a Interaction d'échange :

A champ magnétique nul, la levée de dégénérescence des photons émis lors de la recombinaison radiative de l'exciton neutre est principalement due à l'interaction d'échange entre les spins de l'électron et du trou. La forme générale du hamiltonien d'échange entre un trou de spin J_h et un électron de spin J_e est donnée par [36] :

$$H_{e-h} = \sum_{i=x,y,z} (a_i J_{h,i} \cdot J_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 J_{e,i}) \quad (1.25)$$

Comme nous en avons discuté dans la partie 1.1.3b sur la structure de bande de GaAs et InAs, la bande de trou léger est décalée à basse énergie d'au moins quelques dizaines de meV par rapport à la bande de trou lourd. Ce décalage est bien plus grand que l'échelle d'énergie de la structure fine (de quelques μeV à une centaine de μeV). En première approximation, les complexes excitoniques ne sont formés que de trous lourds.

Pour l'exciton neutre, il y a seulement un électron et un trou dans la boîte quantique. Dans la base $(|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle)$ de la projection du moment cinétique de l'exciton neutre $|M\rangle = |J_{e,z} + J_{h,z}\rangle$, le terme d'échange s'écrit [36] :

$$H_{\text{échange}}(X) = H_{e-h} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} +\delta_0 & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & +\delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.26)$$

où

$$\begin{cases} \delta_0 &= -\frac{3}{4}(a_z + \frac{9}{4}b_z) \\ \delta_1 &= \frac{3}{8}(b_x - b_y) \\ \delta_2 &= \frac{3}{8}(b_x + b_y) \end{cases} \quad (1.27)$$

Il s'agit d'une matrice diagonale par blocs : un bloc pour les excitons brillants (i.e. $|M| = 1$) et un bloc pour les excitons noirs (i.e. $|M| = 2$). De fait, *les excitons noirs ne se mélangent pas aux excitons brillants*. Nous avons en plus $\delta_0 \gg \delta_1, \delta_2$ car les coefficients des termes linéaires a_i sont beaucoup plus grands que ceux des termes au cube b_i dans l'équation (1.25). En conséquence, les excitons noirs et brillants restent bien séparés en énergie d'une quantité δ_0 . Nous avons $\delta_2 \neq 0$ quelle que soit la symétrie de la boîte, donc il y a toujours une levée de dégénérescence des excitons noirs avec un *splitting* δ_2 . Pour une boîte de symétrie D_{2d} (i.e. symétrie de rotation autour de l'axe Oz), nous avons $\delta_1 = 0$ (car $b_x = b_y$) : les états $|\pm 1\rangle$ restent états propres du système. Cependant, pour une symétrie $< D_{2d}$ (par exemple une boîte de base elliptique dont les axes sont suivants X_0 et Y_0), nous avons $\delta_1 \neq 0$, et les nouveaux excitons brillants sont les mélanges non-dégénérés de $|\pm 1\rangle$:

$$\begin{aligned} |X_0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|+1\rangle + |-1\rangle) \\ |Y_0\rangle &= \frac{1}{i\sqrt{2}} (|+1\rangle - |-1\rangle) \end{aligned} \quad (1.28)$$

pour lesquels *les transitions sont linéairement polarisées suivant X_0 et Y_0 , qui sont les axes de symétrie de la boîte quantique*.

Pour l'exciton chargé positif X^+ , trois charges sont confinées dans la boîte quantique : deux trous de spins opposés et un électron. D'après l'équation (1.25) : $H_{e-h\uparrow} = -H_{e-h\downarrow}$, si bien que $H_{\text{échange}}(X^+) = H_{e-h\uparrow} + H_{e-h\downarrow} = 0$. *Il n'y a donc pas de terme d'interaction d'échange électron-trou pour l'exciton chargé positif, et de même pour l'exciton chargé négatif. Les transitions optiques associées sont donc polarisées circulairement.*

Pour le biexciton, en raisonnant sur la cascade biexciton-exciton, nous pouvons montrer facilement que sa structure fine est donnée par celle de l'exciton brillant : deux transitions linéairement polarisées suivants X_0 et Y_0 de *splitting* $|\delta_1|$, mais dans un ordre énergétique inversé [76].

En conclusion, on peut considérer qu'en première approximation, l'interaction d'échange électron-trou lève la dégénérescence des transitions associées aux exciton neutre et biexciton. Les spectres de luminescence sont formés de doublets polarisés linéairement suivant X_0 et Y_0 :

- Les intensités suivant X_0 et de Y_0 sont équivalentes,

- Les axes X_0 et Y_0 coïncident avec les axes de symétrie du potentiel de confinement de la boîte quantique.

1.2.4.b Mélange trou lourd-trou léger

Jusqu'à présent, nous n'avons considéré que les états de trous lourds dans la formation des complexes excitoniques. Cependant, bien que les états de trous lourds et trous légers soient a priori bien séparés en énergie de quelques dizaines de meV, l'effet des contraintes sur la structure de bande d'un semiconducteur décrit par le hamiltonien de Bir et Pikus [77] conduit à un couplage trou lourd-trou léger pour des spins opposés, dans une boîte quantique [78]. Par conséquent, les états de trou ne sont plus des états purs de trous lourds mais des mélanges de trous lourds (i.e. $\psi_{\pm 3/2}$) et de trous légers (i.e. $\psi_{\mp 1/2}$) :

$$\tilde{\psi}_{h\pm} = \frac{1}{\sqrt{1 + |\beta|^2}} (\psi_{\pm 3/2} + \beta \psi_{\mp 1/2}) \quad (1.29)$$

où $\beta = e^{\pm i\xi} |\beta|$

Le coefficient de mélange $|\beta|$ a des valeurs comprises entre 0.2 et 0.7, mesurées par différents groupes sur des boîtes quantiques InAs, CdSe et CdTe [78–80]. L'argument ξ de β s'appelle l'angle d'anisotropie. Une fois ce mélange trou lourd-trou léger pris en considération, les structures fines de l'exciton neutre, du biexciton et de l'exciton chargé sont modifiées [81] :

- les doublets de X et de XX sont toujours polarisés linéairement, cependant, leurs polarisations ne sont plus X_0, Y_0 mais X, Y ,
- les axes X et Y ne sont plus orthogonaux,
- il existe une anisotropie en intensité des signaux émis suivant les deux polarisations X et Y ,
- le *splitting* de la structure fine n'est plus égal à $|\delta_1|$.
- l'exciton chargé n'est plus polarisé circulairement. Son diagramme de polarisation a deux axes symétriques qui sont définis par ξ et $\xi + 90^\circ$.

1.3 Mécanismes de relaxation

Nous venons d'établir les propriétés électroniques et optiques des différents complexes excitoniques. Dans cette section, nous allons envisager les mécanismes de relaxation pour peupler ces états (i.e. relaxation de population) et aussi la cohérence de l'émission de ces états (i.e. relaxation de cohérence).

1.3.1 Relaxation de population

La plupart des expériences de spectroscopie de boîtes quantiques est réalisée avec une excitation optique non-résonnante. Avec ce type d'excitation, un laser non-résonnant crée des porteurs dans la barrière ou dans la couche de mouillage. Ces porteurs peuvent ensuite relaxer jusqu'aux états S_e et S_h de la transition fondamentale grâce à deux types de mécanismes (voir figure 1.13(a)) :

1. Mécanisme de capture des porteurs du continuum 3D ou 2D vers des états discrets peu confinés (par exemple les états P_e, P_h)
2. Mécanisme de relaxation dite inter-sousbande entre états discrets (par exemple de l'état $P_e \rightarrow S_e$ ou $P_h \rightarrow S_h$)

Bien que ces deux mécanismes soient étudiés séparément d'un point de vue théorique [82–87], c'est leur effet conjoint qui est mesuré dans des expériences résolues en temps, via le temps caractéristique de peuplement des états discrets de plus basse énergie, après une photo-injection des porteurs dans la barrière ou dans la couche de mouillage [88, 89]. Les résultats expérimentaux montrent que pour des échantillons de boîtes quantiques très diluées (où de possibles effets extrinsèques de couplage entre boîtes quantiques sont négligeables), les temps de relaxation inter-sousbande ($\sim 100 \text{ fs} \rightarrow 1 \text{ ps}$) sont en général beaucoup plus courts que les temps de capture des porteurs depuis le continuum ($\sim 1 \rightarrow 10 \text{ ps}$). Les temps de relaxation vers les états finaux S_e, S_h sont donc souvent attribués seulement aux temps de capture [89–91] (voir figure 1.13(b)). Par conséquent, dans cette discussion sur la relaxation de population, nous nous limiterons aux processus de capture de charges dans les boîtes quantiques. La relaxation inter-sousbande, bien que secondaire pour la relaxation de population, joue un rôle très important dans la relaxation de cohérence, que nous discuterons à la fin de ce chapitre.

La capture d'un porteur du continuum vers la boîte quantique est due aux interactions électron-phonon et électron-électron. Plus précisément, nous allons discuter les processus de capture qui peut être soit assistée par émission de phonons optiques, soit assistée par collision porteur-porteur de type Auger. Nous supposons qu'il y a N_e électrons et N_h trous dans la barrière ou dans la couche de mouillage. Ces porteurs sont créés par une excitation optique non-résonnante de puissance p . Les équations différentielles d'évolution des populations N_e et N_h sont données par [85] :

$$\begin{aligned} \frac{dN_e}{dt} &= -\gamma_{rad}N_eN_h - R_{capture}^{(e)} + Cp \\ \frac{dN_h}{dt} &= -\gamma_{rad}N_eN_h - R_{capture}^{(h)} + Cp \end{aligned} \tag{1.30}$$

où C est le coefficient de photo-génération de porteurs, γ_{rad} est le taux de recombinaison radiative des porteurs dans la barrière ou dans la couche de mouillage, et $R_{capture}^{(e/h)}$ est le taux de capture d'électron/trou dans les boîtes quantiques. D'autre

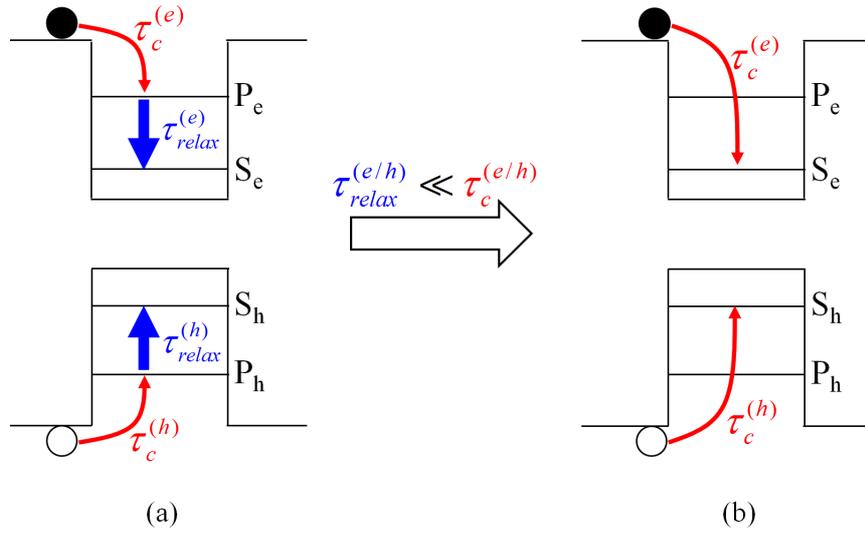


FIGURE 1.13 – (a) Deux mécanismes de relaxation de population : capture de porteurs depuis le continuum et relaxation inter-sousbande. (b) Les temps de relaxation inter-sousbande sont beaucoup plus courts que les temps de capture, les temps de relaxation des porteurs sont donc limités par les temps de capture.

part, G. Cassabois et *al* ont montré que la photoluminescence de la barrière GaAs n'est pas influencée par la population des boîtes quantiques [92]¹ Il n'y a donc qu'une très petite portion de charges photo-crées dans la barrière, qui est capturée dans les boîtes quantiques sous le spot du laser d'excitation. Nous en déduisons que $R_{capture}^{(e/h)} \ll Cp$, et les équations d'évolution de N_e et N_h deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{dN_e}{dt} &= -\gamma_{rad}N_eN_h + Cp \\ \frac{dN_h}{dt} &= -\gamma_{rad}N_eN_h + Cp \end{aligned} \quad (1.31)$$

En état stationnaire, nous obtenons :

$$N_e = N_h \equiv N = \sqrt{\frac{C}{\gamma_{rad}}} \sqrt{p} \quad (1.32)$$

1.3.1.a Capture de porteurs assistée par émission de phonons optiques

La figure 1.14 représente la capture d'un électron du continuum (i.e. état $|i\rangle$) vers un niveau discret M de la boîte quantique (i.e. état $|f\rangle$) par émission d'un

1. Dans cette référence, les auteurs ont observé une invariance de photoluminescence de GaAs lorsque le spot de laser d'excitation se déplace d'une zone sans boîtes quantique à une zone dense de boîtes.

phonon optique, via le couplage de Fröhlich électron-phonon. Par conservation de l'énergie, l'énergie d'un phonon optique $\hbar\omega_{LO}$ est égale à la somme de l'énergie de confinement $E_c^{(M)}$ de l'état M et de l'énergie cinétique initiale de l'électron dans le continuum. La condition pour que la capture soit possible est donc :

$$\boxed{\hbar\omega_{LO} > E_c^{(M)}}.$$

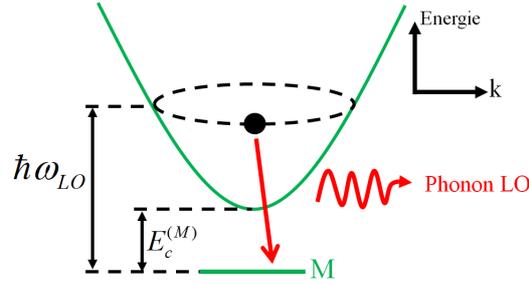


FIGURE 1.14 – Capture d'une charge du continuum vers une boîte quantique par émission d'un phonon optique.

Comme la capture d'un porteur dans une boîte quantique par émission de phonon optique est un processus à une seule charge, le taux de capture d'un électron(trou) est proportionnel au nombre d'électrons(trous) dans le continuum [82, 83, 93], de sorte que :

$$\begin{cases} \gamma_{ph}^e &= A_e N_e \\ \gamma_{ph}^h &= A_h N_h \end{cases} \xrightarrow{1.32} \boxed{\gamma_{ph}^{e(h)} \propto \sqrt{P}} \quad (1.33)$$

où $\gamma_{ph}^{e(h)}$ est le taux de capture d'électron (trou) assistée par phonons optiques. Les coefficients $A_{e(h)}$ sont donnés par [82, 83] :

$$A_{e(h)} = A_0 \left(\frac{1}{m_{e(h)}^*} \right)^{\alpha/2} \exp \left(- \frac{\hbar\omega_{LO} - E_c^{(M)}}{k_B T} \right) \sum_{|i\rangle} \underbrace{|\langle i | H_{e-ph} | f \rangle|^2}_{\text{Couplage Fröhlich}} \quad (1.34)$$

où $\alpha = 3$ pour un continuum 3D et $\alpha = 2$ pour un continuum 2D. Le terme exponentiel représente le nombre de porteurs à l'énergie $\hbar\omega_{LO} - E_c^{(M)}$ dans le continuum, qui suit une distribution de Boltzmann à faible température².

1.3.1.b Capture de porteurs par effet Auger

Les processus de capture assistés par effet Auger font intervenir deux charges où une charge dans le continuum (i.e. la charge dite incidente) est en interaction

2. Il s'agit d'une approximation de la distribution Fermi à faible température [83]

avec une autre charge (i.e. la charge dite cible). La charge cible est initialement soit dans le continuum (effet Auger de type (I) - voir figure 1.15(a)), soit dans la boîte quantique (effet Auger de type (II) - voir figure 1.15(b)). Après interaction coulombienne, la charge incidente est capturée dans la boîte quantique tandis que la charge cible est diffusée dans le continuum à haute énergie. Comme les processus Auger de type (II) ne sont efficaces que pour un petit intervalle de tailles de boîtes quantiques [84, 85], nous ne considérerons que les processus de type (I) dans le cadre de cette thèse.

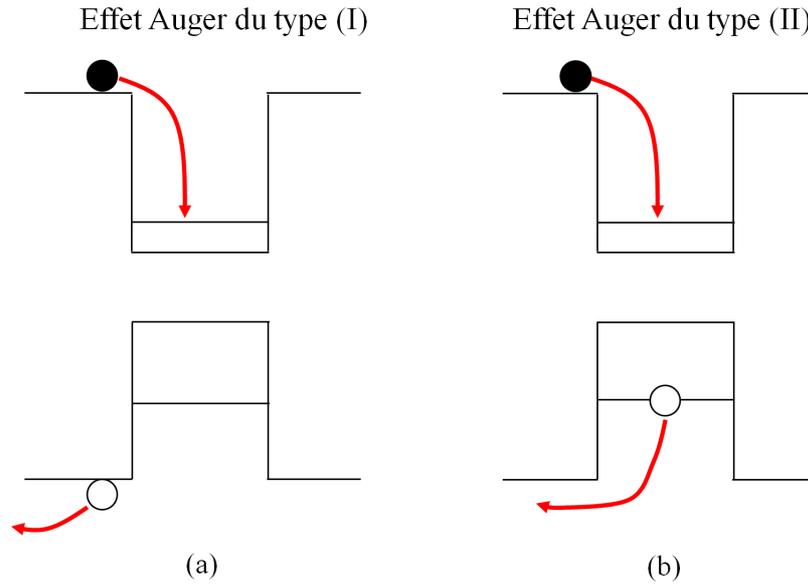


FIGURE 1.15 – Deux types de capture de porteurs par effet Auger dans une boîte quantique : diffusion entre deux porteurs dans le continuum (type (I) - figure (a)) et diffusion entre un porteur dans la boîte quantique avec un porteur dans le continuum (type (II) - figure (b)). Dans le cadre de cette thèse, nous ne considérerons que les processus de type (I).

Pour une capture d'électron(trou) par effet Auger de type (I) dans un état discret M , il s'agit d'une diffusion entre un électron(trou) incident d'énergie ϵ_1 et un porteur (électron ou trou) d'énergie ϵ_2 du continuum, telle que représentée sur la figure 1.16 montrant les deux cas pour une capture d'électron. Le taux de capture d'une charge incidente (électron ou trou) s'écrit alors :

$$\begin{cases} \gamma_A^e &= C_{eh}N_eN_h + C_{ee}N_eN_e \\ \gamma_A^h &= C_{he}N_hN_e + C_{hh}N_hN_h \end{cases} \xrightarrow{1.32} \boxed{\gamma_A^{e(h)} \propto p} \quad (1.35)$$

où $A^{e(h)}$ est le taux de capture d'électron (trou) par effet Auger. Les coefficients

C_{jk} ($j, k \in \{e, h\}$) sont donnés par [82, 84] :

$$C_{jk} = C_0 \left(\frac{1}{m_j^* m_k^*} \right)^{\alpha/2} \sum_{|i\rangle, |f\rangle} \exp \left(-\frac{\epsilon_1 + \epsilon_2}{k_B T} \right) \underbrace{|\langle i | V_{j-k} | f \rangle|^2}_{\text{couplage Coulomb}} \quad (1.36)$$

où $\alpha = 3$ pour un continuum 3D et $\alpha = 2$ pour un continuum 2D. Le terme exponentiel représente le produit de nombre de porteurs à l'énergie ϵ_1 et à l'énergie ϵ_2 dans le continuum dans l'approximation de distribution de Boltzmann à faible température.

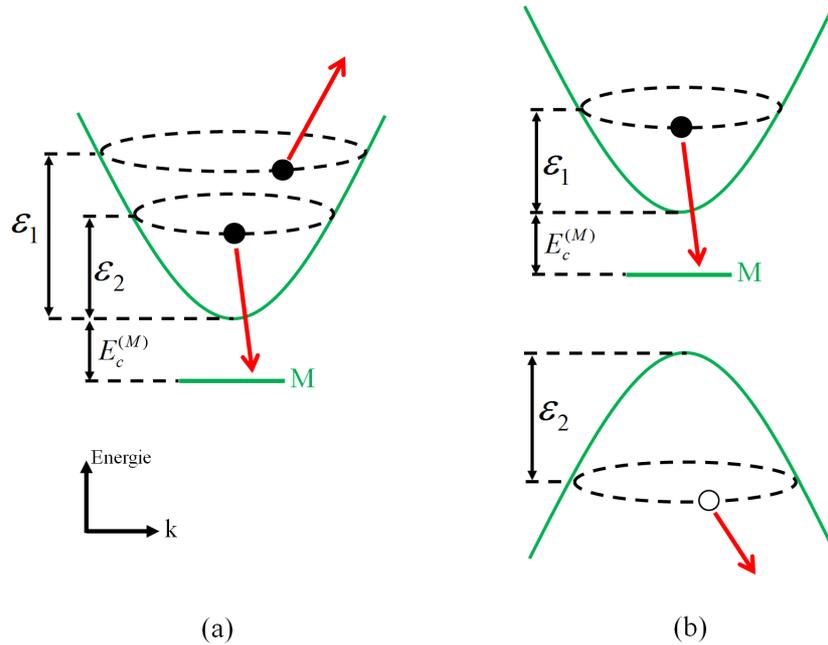


FIGURE 1.16 – Capture d'un électron par effet Auger de type (I) : un électron incident interagit soit avec un autre électron (figure a) soit avec un trou (figure b).

Les calculs théoriques des coefficients C_{jk} réalisés par I. Magnusdottir montrent que [84] :

- C_{jk} dépend fortement de l'énergie de confinement de l'état M : plus $E_c^{(M)}$ est grand, moins la capture est efficace.
- La capture d'une charge incidente par diffusion avec un électron est toujours plus efficace que par diffusion avec un trou : $C_{ee} > C_{eh}$ et $C_{he} > C_{hh}$. En fait, la courbure de la courbe de dispersion de trou est en générale plus petite que celle d'électron, d'où vient une plus grande variation de la quantité de mouvement pour la même variation d'énergie. Ce dernier déduit un couplage coulombien plus important [84].
- Pour un même confinement, la capture d'un trou est aussi efficace que la capture d'un électron : $C_{ee} \approx C_{he}$ et $C_{eh} \approx C_{hh}$.

1.3.2 Relaxation de cohérence

Dans la section précédente, nous avons étudié les mécanismes de relaxation de population pour peupler les états S_e , S_h de la transition fondamentale. Cette section sera consacrée à l'étude des différents phénomènes qui influencent la cohérence des photons émis par recombinaison radiative de paires électron-trou $S_e - S_h$.

1.3.2.a Réduction d'une boîte quantique à un système à deux niveaux

Nous constatons sur la figure 1.7 que la transition $|1S_h - 1S_e\rangle \rightarrow |vide\rangle$ est la seule qui soit isolée spectralement du quasi-continuum d'états électroniques. C'est à partir de cette transition optique fondamentale que nous allons décrire la boîte quantique comme un système à deux niveaux et développer l'analogie avec un atome artificiel. Pour une boîte quantique neutre (sans charge résiduelle) et avec une excitation laser polarisée linéairement (pour sélectionner un état brillant), le niveau fondamental $|g\rangle$ est l'état de la boîte quantique non excitée (figure 1.17a) alors que le niveau excité $|e\rangle$ est l'état d'un des deux excitons brillants (figure 1.17b).

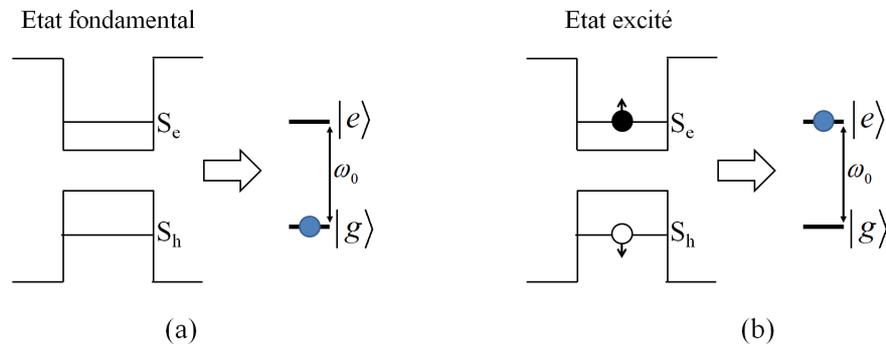


FIGURE 1.17 – Modèle du système à deux niveaux

Les propriétés optiques d'un tel système sont décrites dans la formalisme de la matrice densité, qui s'écrit :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix} \quad (1.37)$$

Les éléments diagonaux ρ_{gg} et $\rho_{ee} = 1 - \rho_{gg}$ décrivent respectivement la population du niveau fondamental $|g\rangle$ et du niveau excité $|e\rangle$, tandis que les éléments non-diagonaux ρ_{ge} et $\rho_{eg} = \rho_{ge}^*$ décrivent la cohérence du système (i.e. la corrélation quantique entre $|g\rangle$ et $|e\rangle$). La relaxation d'un tel système dans le cas d'un couplage non-résonnant avec un champ électromagnétique monochromatique [94]

ou dans le cas d'un couplage résonnant faible (équation (3.54) du chapitre 3, page 91 avec $\Omega = 0$ et $\omega_l = \omega_0$) est décrite par un terme :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \begin{pmatrix} -\frac{\rho_{ee}}{T_1} & -\frac{\rho_{ge}^*}{T_2} \\ -\frac{\rho_{ge}}{T_2} & \frac{\rho_{ee}}{T_1} \end{pmatrix} \quad (1.38)$$

où T_1 est le temps de vie de la population de l'état excité, et T_2 le temps de vie de la cohérence (ou temps de cohérence). Nous pouvons interpréter ce terme de relaxation d'une manière phénoménologique : après excitation, le système à deux niveaux va relaxer de l'état excité $|e\rangle$ vers l'état fondamental $|g\rangle$ au bout d'un temps T_1 par émission spontanée (i.e. la recombinaison radiative entre un électron S_e et un trou S_h). A cause de l'émission spontanée et des différents couplages avec l'environnement fluctuant, la corrélation entre $|e\rangle$ et $|g\rangle$ se perd au bout d'un temps T_2 .

La cohérence est limitée par l'émission spontanée ainsi que les couplages de la boîte quantique avec l'environnement fluctuant, intrinsèques à l'état solide de ce système. Le cas où l'émission spontanée est le seul mécanisme de relaxation considéré est appelé *limite radiative* : le temps de cohérence est alors donné par $T_2 = 2T_1$ [94]. Cette limite radiative est une très bonne approximation pour un gaz dilué d'atomes. A l'inverse, les boîtes quantiques ne sont pas des systèmes isolés puisqu'elles sont d'une part posées sur une couche 2D d'InAs avec des défauts de surface et d'autre part recouvertes par une couche de GaAs. De ce fait, il n'est pas possible de négliger les couplages avec les phonons dans InAs/GaAs et avec les charges piégées dans des défauts au voisinage de la boîte quantique. Ces couplages sont responsables d'une perte de cohérence qui correspond à un temps T_2^* (appelé *temps de déphasage pur*). D'une manière générale, le temps de cohérence T_2 peut s'écrire :

$$\boxed{\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}} \quad (1.39)$$

1.3.2.b Décohérence par couplage aux phonons optiques

Les travaux de O.Verzelen ont mis en évidence un régime de couplage fort entre les états excitoniques d'une boîte quantique et le continuum de phonons optiques [95, 96]. Ce couplage joue un rôle très important non seulement pour la relaxation de population inter-sousbande entre états discrets [86, 87] mais aussi pour la relaxation de cohérence. A cause de ce couplage, les états propres du système sont des états "habillés" exciton-phonon appelés *polarons* qui contiennent une partie exciton et une partie phonon. L'état polaronique de plus basse énergie est tout simplement l'état excitonique fondamental avec zéro phonon :

$$|\psi_0\rangle = |S_e, S_h, 0_{ph}\rangle \quad (1.40)$$

Nous remarquons que cet état est en fait l'état excité du modèle de système à deux niveaux $|\psi_0\rangle \equiv |e\rangle$

Les états polaroniques de plus haute énergie s'écrivent :

$$\begin{cases} |\psi_1\rangle &= \alpha_1 |S_e, S_h, 1_{ph}\rangle + \beta_1 |S_e, P_h, 0_{ph}\rangle \\ |\psi_2\rangle &= \alpha_2 |S_e, S_h, 1_{ph}\rangle + \beta_2 |P_e, S_h, 0_{ph}\rangle \end{cases} \quad (1.41)$$

La partie phonon des polarons est très instable à cause de son interaction avec le réservoir de phonons. En effet, un phonon optique LO se désintègre en deux phonons (un phonon optique LO et un phonon acoustique LA) à cause de l'anharmonicité du cristal. Ce phénomène est bien documenté pour le cas du GaAs massif où le temps de vie du phonon optique τ_{LO} est de l'ordre de 2 ps à 300 K et de 10 ps à basse température [97, 98]. Cette interaction phonon-phonon ouvre un canal de relaxation polaronique très efficace pour $|\psi_1\rangle \rightarrow |\psi_0\rangle$ et $|\psi_2\rangle \rightarrow |\psi_0\rangle$, canal essentiel dans la relaxation inter-sousbande car $|\psi_1\rangle$ a une forte composante P_h et $|\psi_2\rangle$ une forte composante P_e . De manière symétrique, ces processus contribuent à l'élargissement de l'état excité $|e\rangle$ (qui est $|\psi_0\rangle$) dont l'activation avec la température traduit la diffusion assistée par phonons de l'état $|\psi_0\rangle$ vers les états $|\psi_1\rangle$ et $|\psi_2\rangle$:

$$\Delta_{LO} = \sum_i \Gamma_i \exp\left(-\frac{E_i - E_0}{k_B T}\right) \quad (1.42)$$

où E_i est l'énergie de l'état polaronique $|\psi_i\rangle$, et Γ_i est le taux de relaxation polaronique $|\psi_i\rangle \rightarrow |\psi_0\rangle$.

Ces calculs théoriques rendent bien compte des travaux de C.Kammerer [24] où la composante de l'élargissement homogène attribuée au couplage aux phonons optiques est décrite par une expression du type :

$$\boxed{\Delta\Gamma_{LO} = b. \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right)} \quad (1.43)$$

Ces travaux mesurent une énergie d'activation ΔE comprise entre 21-28 meV qui est en accord avec les calculs théoriques dans le cas d'une relaxation $|\psi_2\rangle \rightarrow |\psi_0\rangle$ dans une boîte quantique de rayon 18 nm [95]. Cependant, les valeurs de $\hbar b$ mesurées sont de l'ordre de quelques meV, valeurs beaucoup plus grandes que les taux de relaxation polaronique calculés par T.Grange [87] : $\hbar b_{\text{théorique}} \approx 0.013 \text{ meV}$. Afin d'expliquer cette différence, il faudrait probablement aller à un ordre supérieur et considérer un couplage Fröhlich quadratique entre exciton et phonon. Les termes associés correspondent à une absorption puis émission d'un phonon optique pour faire passer la boîte dans un état virtuel à un phonon, puis revenir à l'état $|e\rangle$ [23].

1.3.2.c Décohérence par couplage avec un environnement électrostatique fluctuant

Les défauts surfaciques de la couche de mouillage et les impuretés dans la barrière constituent des pièges pour des charges résiduelles. La dynamique de piégeage et de dépiégeage (figure 1.18) conduit à un environnement électrostatique fluctuant autour d'une boîte quantique et influence fortement son émission. En effet, la présence de charges résiduelles à l'extérieur d'une boîte quantique décale son émission par effet Stark. Ce phénomène dit de diffusion spectrale a été étudié théoriquement par A.Jankovich [99] et observé expérimentalement par plusieurs groupes [100, 101] qui ont pu mesurer des fluctuations temporelles de l'énergie d'émission de boîtes quantiques.

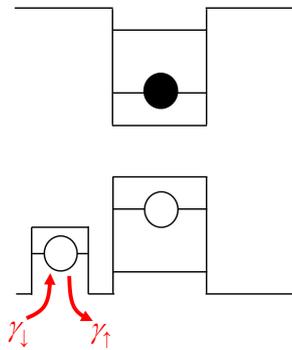


FIGURE 1.18 – *Dynamique de capture et échappement d'un piège à trous au voisinage d'une boîte quantique.*

A.Berthelot a étudié en détail le phénomène de diffusion spectrale au cours de sa thèse [23]. Le processus de capture dans un piège est assez similaire au mécanisme de capture de charge dans une boîte quantique (par émission de phonon optique et par effet Auger) que nous avons discuté auparavant. Cependant, le processus d'échappement est dominé par l'absorption de phonon acoustique et par l'effet Auger. Les études de A.Berthelot ont ainsi mis en évidence deux régimes de fluctuations [102] :

1. **Régime de fluctuation lente** : ce régime correspond à une forte puissance d'excitation non-résonnante (i.e. $p > 0.5 \text{ kW.cm}^{-2}$) ou à température élevée (i.e. $T > 35 \text{ K}$). La raie a un profil gaussien dont la largeur augmente avec l'amplitude des fluctuations.
2. **Régime de fluctuation rapide** : ce régime correspond à une faible puissance d'excitation non-résonnante (i.e. $p < 0.5 \text{ kW.cm}^{-2}$) ou à une température basse (i.e. $T < 35 \text{ K}$). La raie d'émission a un profil lorentzien. Ce régime s'appelle aussi régime de rétrécissement par le mouvement par analogie avec les expériences d'absorption RMN [103]. En particulier, dans ce

régime, le déphasage pur introduit par le couplage avec un environnement électrostatique donne un élargissement en température de la forme [23,104] :

$$\Delta\Gamma_{fluctuant}(T) = \Delta\Gamma_0 + a.T \quad (1.44)$$

où la constante $\Delta\Gamma_0$ est de l'ordre de quelques μeV et le coefficient a est de l'ordre de quelques $\mu eV.K^{-1}$. Le terme linéaire est lié aux processus de capture/échappement par émission/absorption de phonons, et le coefficient a est donné par [104] :

$$a = \frac{2N\Delta^2\gamma_{LA}k_B}{\hbar\gamma_{\downarrow}^2 E_{LA}} \quad (1.45)$$

où Δ est le *Stark shift* dû à l'occupation du piège par une charge, N est le nombre total de pièges, γ_{LA} est le taux d'absorption d'un phonon acoustique, γ_{\downarrow} est le taux de capture qui ne dépend pas de la température.

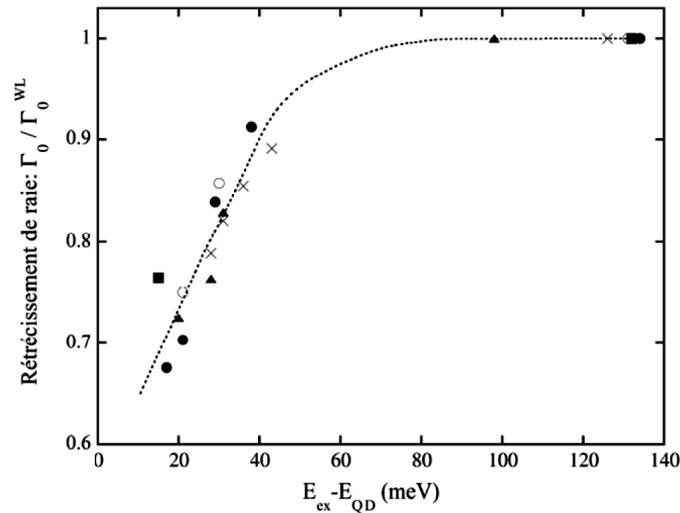


FIGURE 1.19 – Evolution de la largeur homogène de différentes boîtes quantiques à différentes énergies d'excitation. Chaque symbole correspond à une boîte quantique. Γ_0 est la largeur extrapolée à 0K d'une excitation à l'énergie E_{ex} et Γ_{WL} est la largeur extrapolée à 0K d'une excitation dans la couche de mouillage.

D'autre part, C.Kammerer *et al* [105] a mis en évidence que cette diffusion spectrale est d'autant plus faible que l'énergie d'excitation est proche de celle de la transition fondamentale (voir la figure 1.19). Les largeurs les plus faibles mesurées dans la référence [105] correspondent à une excitation résonnante avec les états excités où les paires électron-trou sont créées directement dans la boîte sur les états P_h et P_e , ce qui minimise la création de porteurs dans l'environnement de la

boîte. De fait, ces résultats suggèrent que le déphasage pur dû à l'environnement fluctuant va être supprimé pour une excitation strictement résonnante où les paires électron-trou sont injectées directement sur les états confinés de plus basse énergie S_h et S_e .

1.4 Excitation résonnante vs excitation non-résonnante

1.4.1 Excitation non-résonnante : la fin du modèle de système à deux niveaux

Les premières expériences de photoluminescence sur boîte quantique unique ont été effectuées sous excitation non-résonnante [1, 106]. Il s'agit aujourd'hui d'une technique bien maîtrisée par les groupes qui effectuent la spectroscopie d'objets uniques. Dans une expérience de photoluminescence avec excitation non-résonnante (figure 1.20(a)), l'absorption d'un photon à haute énergie conduit à la création de paires électron-trou dans la couche de mouillage d'InAs ou dans la barrière de GaAs. Une paire électron-trou peut être capturée dans les états discrets peu profonds de la boîte, puis relaxer vers les niveaux S_e et S_h (voir la section 1.3.1). Enfin la recombinaison radiative produit l'émission d'un photon à l'énergie de la transition $S_h - S_e$. Ces expériences ont mis en évidence l'efficacité des mécanismes de relaxation non-radiative (sur des échelles temporelles de l'ordre de quelques ps) par rapport à la recombinaison radiative des porteurs (de l'ordre de la ns) alors que les travaux théoriques au début des années 90 prévoyaient au contraire un couplage aux phonons peu efficace [107–109]. Avec la réussite des mesures sous excitation non-résonnante, ce phénomène (appelé *phonon bottleneck*) n'a de fait pas été observé. L'énigme théorique a été résolue par la théorie de couplage fort exciton-phonon [95] qui permet un canal de relaxation ultra-rapide entre les états d'une boîte quantique [86, 87]. L'efficacité des processus de capture de porteurs créés dans le continuum d'états par le laser non-résonnant provient des mécanismes assistés par phonons optiques [82, 83] et par effet Auger [84, 85], comme nous l'avons discuté précédemment.

Bien que le montage d'excitation non-résonnante soit devenu standard, il induit plusieurs limites qui empêchent de considérer une boîte quantique comme un système à deux niveaux idéal, à savoir un atome artificiel :

1. Une excitation non-résonnante peuple non seulement l'état d'exciton neutre $|1S_h - 1S_e\rangle$ mais souvent plusieurs complexes excitoniques. Le spectre d'émission d'une boîte quantique unique sous excitation non-résonnante présente en général plusieurs raies qui correspondent aux photons émis par désexcitation de X , X^\pm et XX (figure 1.20(b)). Il faudrait considérer un système à 8 niveaux, y compris la levée de dégénérescence de l'état $|1S_h - 1S_e\rangle$, pour décrire complètement toutes les transitions optiques possibles d'une boîte

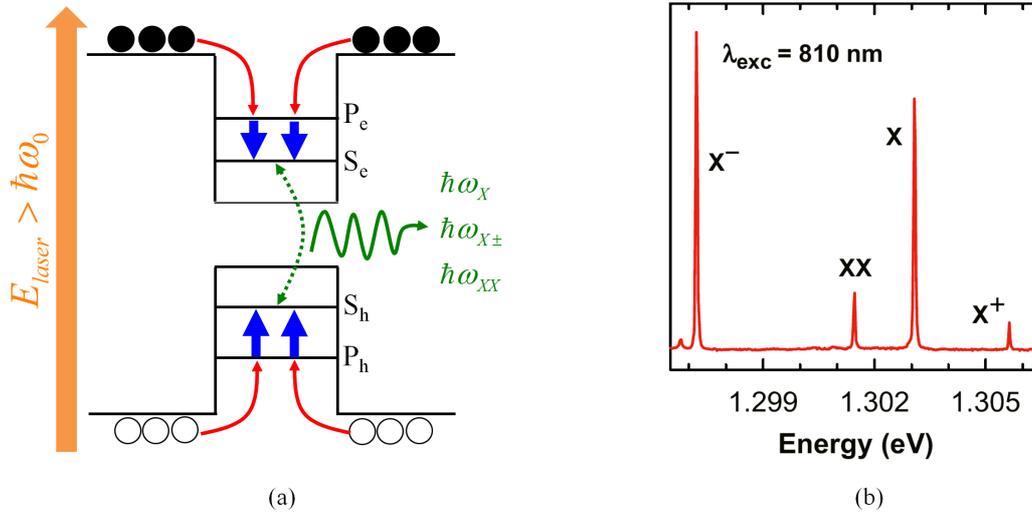


FIGURE 1.20 – (a) Principes de la photoluminescence non-résonnante. (b) Un spectre de photoluminescence non-résonnante d'une boîte quantique unique [110].

quantique unique : $\{|iS_h - jS_e\rangle\}$ avec $i, j \in \{0, 1, 2\}$.

2. Les porteurs créés dans la barrière ou dans la couche de mouillage peuvent se piéger dans les défauts au voisinage de la boîte quantique pour constituer un environnement électrostatique fluctuant qui dégrade dramatiquement la cohérence.
3. En arrivant aux états S_h et S_e , les porteurs perdent une grande partie des informations de spins initiales à cause des processus non-radiatifs (diffusion porteur-phonon et diffusion porteur-porteur pour la capture, diffusion phonon-phonon pour la relaxation inter-sousbande). Les expériences de pompage optique sous excitation non-résonnante sont de fait difficiles.
4. Il s'avère parfois difficile d'avoir une seule boîte quantique sous le spot laser d'excitation même sur les échantillons très dilués puisque les boîtes quantiques ont tendance à se former par paquet. Dans la plupart des cas, une excitation non-résonnante excite principalement une boîte quantique mais aussi quelques autres boîtes quantiques au voisinage. Les raies observées dans un spectre d'émission peuvent appartenir à différentes boîtes quantiques et il faut procéder à une étape supplémentaire de caractérisation pour les identifier et savoir lesquelles concernent une boîte quantique donnée.

Les problèmes énumérés ci-dessus dans le cas d'une excitation non-résonnante motivent le développement d'une nouvelle configuration d'excitation des boîtes quantiques uniques : la photoluminescence par excitation résonnante.

1.4.2 Excitation résonnante : la clé pour manipuler un atome artificiel

Il faut attendre plus de dix ans après les premières expériences de micro-photoluminescence sur boîtes quantiques uniques pour que l'excitation strictement résonnante soit réalisée par Muller *et al* [26]. Le scénario d'une telle excitation est beaucoup plus simple que celui d'une excitation non-résonnante mais la mise en oeuvre expérimentale bien plus délicate : la paire électron-trou est créée directement sur les niveaux S_e et S_h avant de se recombiner pour émettre un photon à la même énergie que le photon absorbé (figure 1.21(a)). Dans ce cas, le défi expérimental consiste à enlever la diffusion parasite du laser (de 5 à 6 ordres de grandeur plus grande que l'émission d'une boîte quantique unique) dans le signal détecté. Pour s'affranchir ce problème, la technique mise en place par plusieurs groupes consiste à découpler spatialement l'excitation de la détection avec l'aide de micro-cavités 2D ou 3D [26–28].

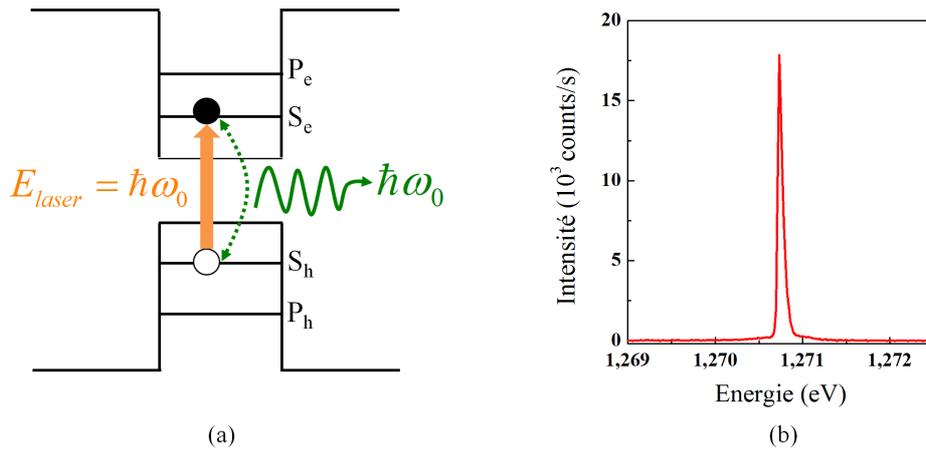


FIGURE 1.21 – (a) Principes de la photoluminescence résonnante. (b) Un spectre de photoluminescence résonnante de la boîte quantique nommée QD1 dans cette thèse.

La réussite du montage d'excitation résonnante permet désormais d'étudier une boîte quantique comme un vrai système à deux niveaux. Plusieurs phénomènes de physique atomique comme le triplet de Mollow [111] ou les oscillations de Rabi [112] ont été observés sur des boîtes quantiques uniques [26, 27, 113]. En effet, tous les problèmes dus à l'excitation non-résonnante sont résolus dans le cas d'une excitation résonnante :

1. La paire électron-trou est créée directement dans les états S_e et S_h , et seul l'exciton neutre est excité. Plus précisément, pour un laser d'excitation résonnante dont la largeur est plus petite que le *splitting* associé à la levée de dégénérescence de X , seul un des deux états brillants de la structure fine

de d'exciton neutre est excité. Comme la relaxation de spin des porteurs dans une boîte quantique à basse température est très lente (de l'ordre de ms) [114–118] par rapport au temps de vie radiatif (de l'ordre de ns), la population de l'état excitonique pompé sélectivement ne change pas jusqu'à la recombinaison radiative. Autrement dit, en première approximation, il n'y a que deux états de la boîte quantique qui interviennent depuis l'absorption résonnante d'un photon jusqu'à l'émission : l'état du vide et un des deux états brillants de la structure fine de l'exciton neutre. On peut réduire la boîte quantique à un système à deux niveaux.

2. Comme il n'y a pas de porteurs créés dans le continuum de la barrière ou de la couche de mouillage, les défauts au voisinage de la boîte quantique ne sont pas occupés (en l'absence de dopage résiduel). L'environnement électrostatique est beaucoup plus "propre", sans fluctuation, ce qui conduit a priori à une suppression de la diffusion spectrale. La décohérence due au couplage aux phonons optiques étant négligeable pour des températures inférieures à 30K [24], une excitation résonnante à basse température doit permettre d'atteindre la limite radiative.
3. Les spins de la paire électron-trou sont imposés par la polarisation du laser d'excitation et ne changent pas jusqu'à la recombinaison radiative. L'excitation résonnante permet de réaliser des expériences de pompage optique pour mettre en oeuvre des protocoles d'information quantique.
4. Même s'il y a plusieurs boîtes quantiques sous le spot laser d'excitation, une seule boîte quantique peut être excitée grâce à la sélectivité spectrale du laser.

1.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que les boîtes quantiques semiconductrices InAs/GaAs possèdent un spectre énergétique discret, essentiel pour des sources de photons uniques. Cependant, le couplage avec l'environnement (phonons, charges au voisinage de la boîte) limite la cohérence des photons émis par la boîte. Ce couplage est réduit au maximum dans le cas d'une excitation résonnante à 0K. De plus, sous excitation résonnante sélective en polarisation, seul un état d'exciton neutre de la boîte peut être excité et la boîte quantique peut être considérée comme un système à deux niveaux comme en physique atomique. Une excitation résonnante apparaît donc essentielle à la fois pour des sources de photons uniques ultra-cohérentes et pour des études fondamentales autour de l'analogie boîte quantique - atome artificiel. Le chapitre suivant va décrire les dispositifs expérimentaux et les détails de notre échantillon pour faire une excitation résonnante d'une boîte quantique unique.

Chapitre 2

Aspects expérimentaux

Dans ce deuxième chapitre, nous présentons dans un premier temps les caractéristiques de l'échantillon étudié pendant cette thèse et qui est constitué d'un plan de boîtes quantiques InAs/GaAs de très faible densité inséré dans une micro-cavité planaire. Nous présentons ensuite les montages optiques qui ont été utilisés pour les différentes expériences de spectroscopie, en particulier le montage d'excitation résonnante par fibre optique. Ce chapitre introduit également des résultats préliminaires de caractérisation tels que le spectre de photoluminescence sous excitation non-résonnante, le spectre d'excitation de la photoluminescence non-résonnante, les mesures de photoluminescence résolue en temps et les mesures de la fonction de corrélations du second ordre.

Sommaire

2.1	Échantillon	48
2.1.1	Plan de boîtes quantiques InAs/GaAs	48
2.1.2	Micro-cavité planaire AlAs/AlGaAs	48
2.1.3	Influence de la micro-cavité sur l'émission des boîtes quantiques	50
2.2	Micro-photoluminescence	51
2.2.1	Micro-photoluminescence en géométrie confocale	51
2.2.2	Micro-photoluminescence sous excitation fibrée	52
2.2.3	Dispositifs de détection	54
2.2.4	Différentes expériences de micro-photoluminescence	55
2.3	Spectroscopie par transformée de Fourier	56
2.3.1	Principe	56
2.3.2	Montage optique	57
2.4	Mesure des corrélations en intensité	58
2.4.1	Principe	59
2.4.2	Montage optique	62
2.4.3	Construction d'un histogramme par la carte d'acquisition	63
2.5	Photoluminescence résolue en temps	64

2.5.1	Principe	64
2.5.2	Montage optique	64
2.6	Mesures préliminaires de caractérisation	66
2.6.1	Spectre de PL non-résonnante	66
2.6.2	Spectre de PLE non-résonnante	70
2.6.3	Photoluminescence non-résonnante résolue en temps	71
2.6.4	Mesures de corrélations du deuxième ordre	72
2.7	Conclusion	74

2.1 Échantillon

L'échantillon utilisé au cours de cette thèse est un échantillon comprenant un plan unique de boîtes quantiques InAs/GaAs qui est inséré dans une micro-cavité planaire AlAs/AlGaAs. Cet échantillon a été fabriqué par l'équipe de Pierre Petroff au Materials Department de l'Université de Santa Barbara. Nous commençons par décrire les caractéristiques du plan de boîtes quantiques, puis celles de la micro-cavité planaire ainsi que l'influence de la cavité sur l'émission des boîtes.

2.1.1 Plan de boîtes quantiques InAs/GaAs

Notre échantillon est un morceau de l'échantillon utilisé au cours de la thèse de Ivan Favero [25], l'échantillon original étant noté C dans son manuscrit. Ce morceau fait partie de la zone de boîtes présentant des densités moyennes de l'ordre de 10^7 boîtes/ cm^2 (ou 10^{-1} boîtes/ μm^2). La caractérisation de I. Favero effectuée sur l'échantillon original C qui présente des variations de densité de 10^7 à 10^{10} boîtes/ cm^2 donne les propriétés suivantes [25] :

- Distribution de l'énergie des boîtes quantiques de 1.240 eV ($1 \mu m$) à 1.305 eV (950 nm).
- Maximum de la distribution à 1.27 eV (975 nm).
- Luminescence de la couche de mouillage à 1.45 eV (855 nm).

Dans cet échantillon, nous notons que la nucléation des boîtes s'est effectué dans des zones assez localisées. Nous sommes donc souvent en présence de boîtes quantiques groupées "par paquets" et la densité réelle est alors plus grande que la densité moyenne de 10^7 boîtes/ cm^2 .

2.1.2 Micro-cavité planaire AlAs/AlGaAs

Le plan de boîtes décrit ci-dessus est inséré au centre d'une micro-cavité planaire AlAs/AlGaAs de cœur GaAs. Il s'agit d'une cavité Fabry-Pérot composée de deux miroirs de Bragg constituées de couches AlAs et AlGaAs alternées de même épaisseur optique $\lambda_0/4$ (ici $\lambda_0 = 1\mu m$). Le cœur de la cavité est une couche GaAs d'épaisseur optique λ_0 . Les miroirs haut et bas sont respectivement constitués de

11 et 24 paires AlAs/AlGaAs. Cette asymétrie du nombre de paires facilite l'extraction de la lumière dans un montage en réflexion. L'ensemble de l'échantillon est présenté sur la figure 2.1.

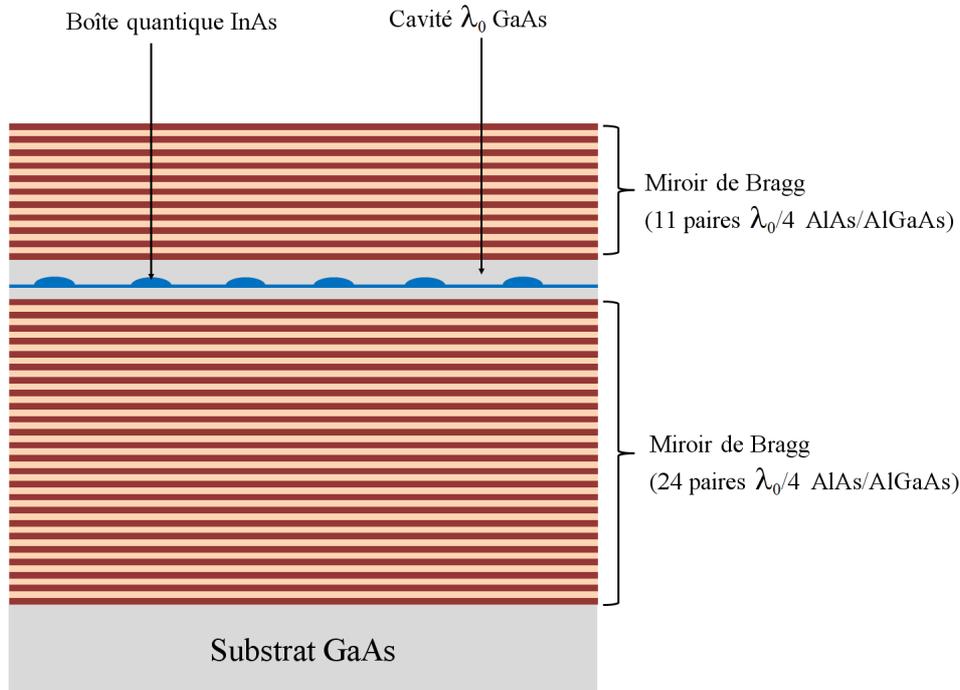


FIGURE 2.1 – Schéma de l'échantillon : un mono plan de boîtes quantiques InAs/GaAs de très faible densité est inséré dans une micro-cavité planaire constituée de deux miroirs de Bragg AlAs/AlGaAs.

La figure 2.2 représente la réflectivité de cette micro-cavité calculée par la méthode des matrices de transfert pour une incidence normale [119]. La réflectivité est très élevée ($R \sim 0.99992$) sur un intervalle d'énergie, appelé *bande d'arrêt*, centré autour de la longueur d'onde centrale λ_0 . Au centre de la bande d'arrêt apparaît un creux de réflectivité correspondant au mode de cavité Fabry-Pérot d'énergie $E_{\text{cavité}} \approx 1.272 \text{ eV}$ (i.e. $\lambda_{\text{cavité}} \approx 975 \text{ nm}$) et de largeur $\Delta E \approx 0.55 \text{ meV}$. Le facteur de qualité théorique est alors égal à $Q = E_{\text{cavité}}/\Delta E \approx 2360$. En-dehors de la bande d'arrêt, la réflectivité diminue et oscille en passant par des valeurs proches de zéro (cela définit les modes de Bragg). Nous remarquons que le minimum du creux de réflectivité correspondant au mode de cavité est assez élevé ($R_{\text{mode}} = 0.94$). Ceci est dû à l'asymétrie de la cavité qui a tendance à détériorer la réflectivité de la cavité à l'énergie du mode de cavité ($R_{\text{mode}} \approx 0$ dans le cas de deux miroirs de Bragg symétrique).

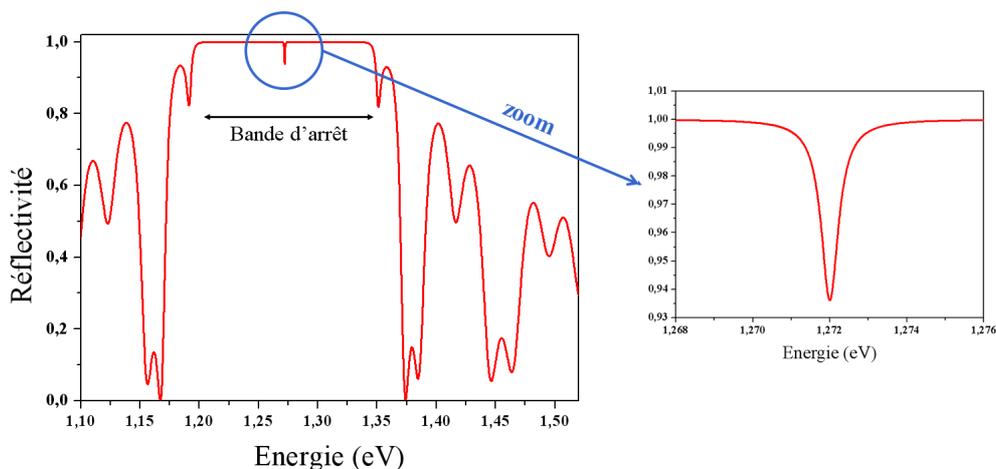


FIGURE 2.2 – Réflectivité de la micro-cavité AlAs/AlGaAs calculée par la méthode des matrices de transfert sous incidence normale [119].

2.1.3 Influence de la micro-cavité sur l'émission des boîtes quantiques

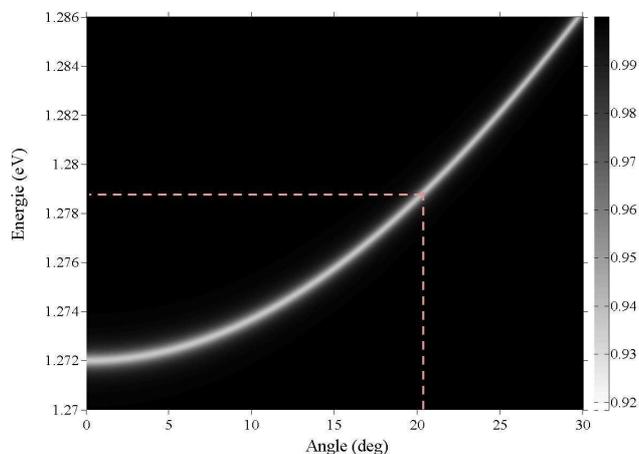


FIGURE 2.3 – Dispersion du mode de cavité calculée par la méthode des matrices de transfert [119]. L'objectif de microscope d'ouverture numérique $ON=0.35$ (i.e. détection dans un cône de demi-angle au sommet $\theta = 20.5^\circ$) peut collecter une émission de boîtes quantiques entre 1.272 eV et 1.279 eV.

Le couplage entre un système à deux niveaux en résonance avec une cavité plane de facteur de qualité 2360 correspond au régime de couplage faible. Le facteur de Purcell [13, 120] pour une microcavité plane est très proche de 1. Par conséquent, le taux de l'émission spontanée des boîtes quantiques n'est pas

du tout modifié par la présence de la cavité dans notre échantillon. Cependant, la cavité a une influence importante sur l'émission des boîtes quantiques [121] :

- Seules les photons de l'énergie plus grande que 1.272 eV^1 peuvent sortir de la cavité.
- Ces photons sont émis dans la direction du mode couplé avec la boîte correspondante, et non dans toutes les directions de l'espace comme le cas d'émission de boîtes quantiques sans cavité. Cela permet d'une efficacité d'extraction jusqu'à 50 % par rapport 2 % du cas d'une boîte quantique dans une matrice de GaAs sans cavité [122]. D'autre part, dans notre expérience, nous utilisons pour la détection un objectif de microscope d'ouverture numérique $\text{ON}=0.35$ qui correspond à une détection dans un cône de demi-angle au sommet $\theta = 20.5^\circ$. Ainsi d'après la courbe de dispersion de la figure 2.3, seuls les photons d'énergie comprise entre 1.272 eV et 1.279 eV peuvent être collectés.

En résumé, l'émission d'une boîte quantique en microcavité planaire est redirigée suivant le mode de la cavité. Ce dernier joue en plus un rôle de filtre spectral de fenêtre [$1.272 \text{ eV}, 1.279 \text{ eV}$] qui est imposé par l'ouverture numérique de notre objectif de microscope.

2.2 Micro-photoluminescence

2.2.1 Micro-photoluminescence en géométrie confocale

Pour caractériser l'échantillon sous excitation non-résonnante, nous utilisons un montage standard de géométrie confocale (voir figure 2.4) :

- L'échantillon est collé sur le doigt froid d'un cryostat Oxford à circulation continue d'Hélium permettant d'atteindre des températures minimales de 7 K.
- Le laser d'excitation est un laser HeNe continu à 632 nm (i.e. 1.96 eV).
- L'excitation et la détection se font par le même objectif de microscope Nacet de grossissement 20 (d'où le terme confocal), grâce à une lame séparatrice. Il s'agit d'une séparatrice $R=70/T=30$ pour les longueurs d'onde caractéristiques d'émission des boîtes quantiques (i.e. $\sim 975 \text{ nm}$), et $R=30/T=70$ pour la longueur d'onde d'excitation du laser HeNe. L'objectif Nacet a une ouverture numérique égale à $\text{ON}=0.35$. La résolution spatiale que permet d'atteindre cet objectif est de l'ordre de $2 \mu\text{m}$. Grâce à cette résolution, il est possible d'exciter et de détecter le signal d'une boîte quantique unique du fait de la très faible densité de boîtes de 10^{-1} boîtes/ μm^2 .
- L'objectif Nacet est fixé sur une platine piézo-électrique 3 axes XYZ (modèle Nanocube de PI) de course $100 \times 100 \times 100 \mu\text{m}^3$. Cette platine piézo-

1. L'énergie minimale dans la courbe de dispersion du mode de cavité (figure 2.3).

électrique permet l'optimisation à la fois de l'excitation et de la détection de l'émission d'une boîte quantique unique précise.

Bien que la géométrie confocale permette d'étudier l'émission d'une boîte quantique unique, il est impossible d'utiliser ce type de montage pour réaliser une excitation résonnante d'une boîte quantique unique. En effet, il existe toujours une importante contribution de la diffusion du laser dans le signal de détection puisque l'excitation et la détection ont le même chemin optique à travers la séparatrice (figure 2.4). Un autre montage d'excitation s'avère donc indispensable pour exciter les boîtes quantiques à la résonance.

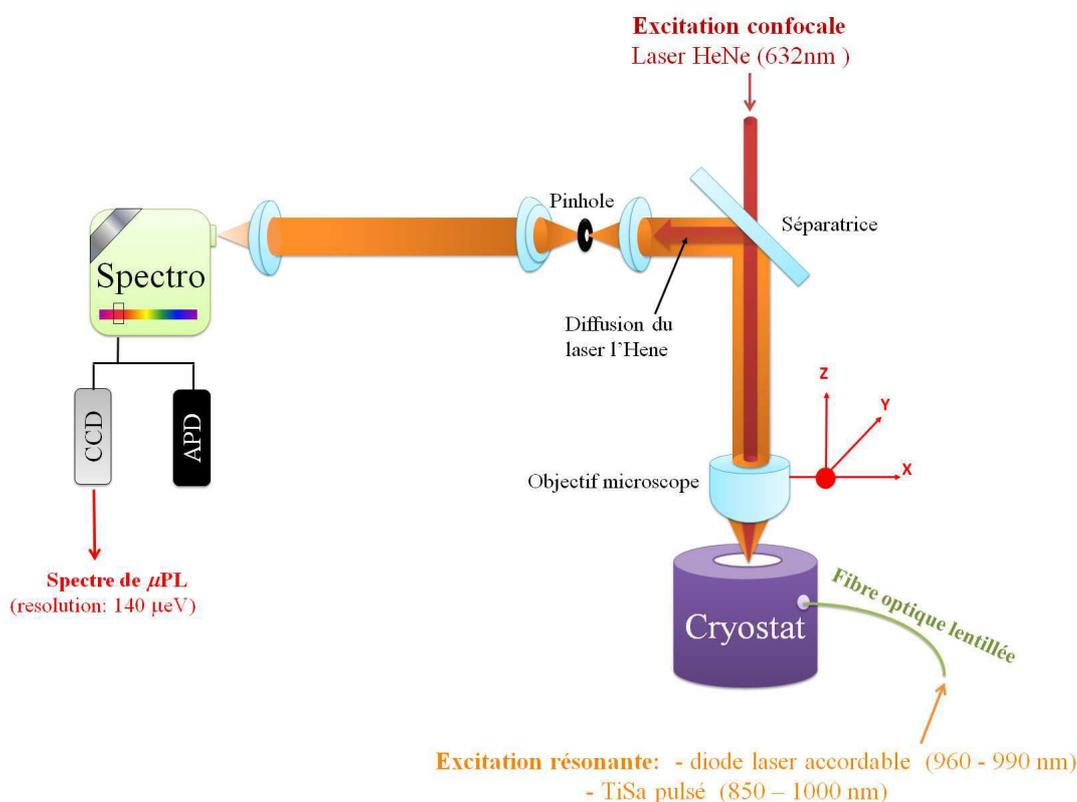


FIGURE 2.4 – Montage optique de micro-photoluminescence (à l'extérieur du cryostat).

2.2.2 Micro-photoluminescence sous excitation fibrée

La grande difficulté d'une expérience sous excitation résonnante réside dans la suppression de la diffusion laser qui est superposée à l'émission de la boîte quantique. Pour ce faire, nous avons adopté une idée utilisée par différents groupes qui repose sur le découplage spatial de l'excitation et de la détection [26–28]. Le montage utilisé est présenté sur la figure 2.5. L'excitation des boîtes quantiques se

fait dans le plan latéral de l'échantillon à l'aide d'une fibre optique tandis que la détection s'effectue dans la direction verticale de l'échantillon par l'intermédiaire du montage confocal décrit précédemment :

- Le laser d'excitation est injecté dans une fibre optique qui est insérée à l'intérieur du cryostat (figure 2.4). Le diamètre du coeur de la fibre est de $125 \mu\text{m}$. Celle-ci est fixée à une distance de l'ordre de $20 \mu\text{m}$ par rapport au bord de l'échantillon. L'extrémité de la fibre est composée de trois parties différentes, chacune de longueur $10 \mu\text{m}$ environ, caractérisées par des indices optiques différents. Ce gradient d'indice optique permet une focalisation du laser sur le bord latéral de l'échantillon comme une lentille convergente. La fibre porte alors le nom de *fibre optique lentillée*. Le spot de focalisation peut atteindre un diamètre de l'ordre du micromètre qui est comparable à l'épaisseur du coeur de la cavité.
- Une fois couplé dans l'échantillon, le faisceau laser reste très peu divergent grâce au fort contraste d'indices optiques entre l'air et le GaAs. De plus, comme l'angle d'incidence du laser sur les miroirs de Bragg est supérieur à l'angle de réflexion totale, le laser reste confiné dans la cavité et se propage sous la forme d'un mode guidé. Autrement dit, la micro-cavité planaire se comporte comme un guide d'onde bi-dimensionnel pour le laser d'excitation qui se propage suivant la surface latérale de l'échantillon.
- L'objectif de microscope Nachet du montage confocal est utilisé pour détecter le signal d'une boîte quantique unique. Cependant, contrairement au montage confocal, la platine piézo-électrique PI sur laquelle est fixé l'objectif permet uniquement ici d'optimiser la détection.
- L'échantillon est fixé sur une deuxième platine trois axes XYZ piézo-électrique Attocube qui permet d'optimiser sa position par rapport à la fibre optique. Cette platine a l'avantage de pouvoir fonctionner à des températures cryogéniques, dans un vide poussé, et permet des déplacements de $60 \times 60 \times 80 \mu\text{m}$ pour les axes X, Y et Z. Cette platine est donc utilisée pour l'optimisation du couplage du laser d'excitation dans l'échantillon.

Suivant les expériences, deux lasers peuvent être utilisés pour une excitation résonnante d'une boîte unique :

- Une diode laser continue à cavité externe (modèle Velocity de NewFocus), monomode, de largeur de raie 1.25 neV (i.e. 300 kHz) et accordable de 960 à 990 nm (i.e. de 1.25 à 1.29 eV) avec un pas de 0.01 nm (i.e. $0.5 \mu\text{eV}$).
- Un laser Titane-Saphire (modèle Tsunami de Spectra Physics) accordable de 850 à 1000 nm (i.e. de 1.24 à 1.46 eV) avec un pas de 0.5 nm (i.e. 0.5 meV), en régime continu ou pulsé. Les impulsions délivrées sont de quelques picosecondes à un taux de répétition de 82 MHz .

Grâce à l'excitation fibrée décrite précédemment, le laser d'excitation est parfaitement confiné dans la cavité planaire. Les diffusions sur le bord de l'échantillon

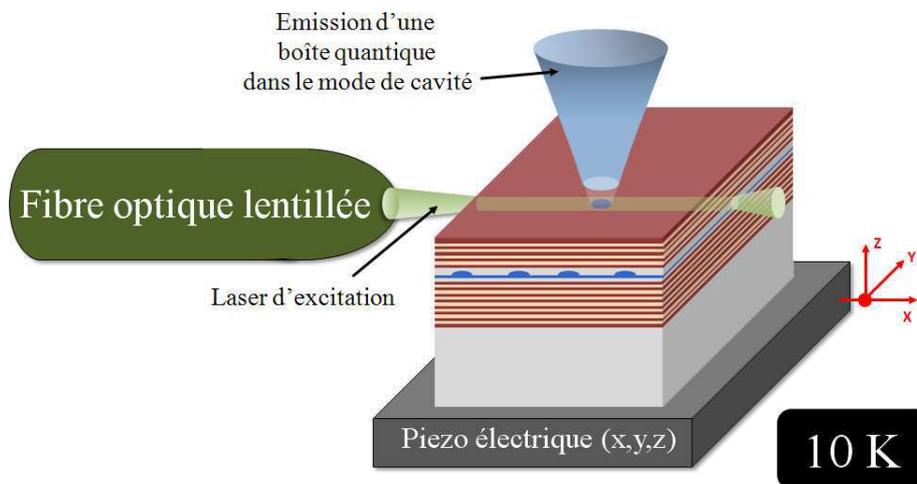


FIGURE 2.5 – Montage d'excitation résonnante. Le laser résonnant issu de la fibre optique se propage au sein de la micro-cavité qui agit comme un guide d'onde bi-dimensionnel grâce au confinement limité par les surfaces de l'échantillon. L'émission de la boîte quantique est détectée suivant la direction verticale de la structure, dans le mode de la cavité. Le découplage spatial de l'excitation et de la détection permet de s'affranchir de la diffusion du laser sur la détection.

et sur les défauts des miroirs de Bragg sont les principales contributions à la diffusion laser superposée au signal résonnant de boîte quantique. Comme les boîtes quantiques étudiées dans cette thèse se trouvent à grande distance du bord de l'échantillon, soit à environ 1 mm, la détection de l'émission de ces boîtes n'est pas perturbée par la diffusion du laser sur le bord de l'échantillon. Comme nous le verrons sur les résultats expérimentaux, la diffusion du laser reste très inférieure, voire négligeable, au signal d'émission de boîte quantique.

2.2.3 Dispositifs de détection

Les deux montages d'excitation (confocale et fibrée) sont reliés à la même voie de détection :

- Le même objectif de microscope Nacet est utilisé pour collecter l'émission perpendiculairement à la surface de l'échantillon.
- Pour améliorer le rapport signal sur bruit, un pinhole de diamètre $200 \mu\text{m}$ est placé dans la voie de détection (figure 2.4). Ce pinhole permet d'avoir une sélection spatiale correspondant à une zone de $1 \mu\text{m}$ sur l'échantillon.
- Après le pinhole, le signal est envoyé vers un monochromateur (modèle HR 320 de Jobin-Yvon) de focale 32 cm. Le réseau de diffraction de ce spectromètre est composé de 1200 traits/mm et est blazé à 750 nm.
- Le signal à la sortie du spectromètre peut être mesuré par une photodiode

à avalanche ou par une caméra CCD² (le passage d'un détecteur à un autre est réalisé à l'aide d'un miroir amovible à l'intérieur du spectromètre). La photodiode à avalanche (modèle SPCM-AQRH de Perkin Elmer) a une efficacité quantique de 22% aux longueurs d'onde d'étude, un bruit noir de 32 coups/s et une zone active de diamètre 180 μm . La résolution spectrale de la détection par photodiode à avalanche est de l'ordre de 0.5 meV. La caméra CCD (modèle DU420A de Andor), qui est une barrette de 1024x255 pixels de taille 26 x 26 μm^2 a une efficacité quantique de 10% et présente donc plus de bruit que la photodiode à avalanche. Néanmoins, celle-ci offre une meilleure résolution spectrale qui est de l'ordre de 140 μeV .

2.2.4 Différentes expériences de micro-photoluminescence

Nous utilisons les définitions suivantes pour l'ensemble des résultats de micro-photoluminescence de cette thèse :

- **Un spectre de photoluminescence (PL)** est une mesure d'intensité en fonction de l'énergie de détection, l'énergie d'excitation étant fixée au cours de la mesure. Cette expérience donne accès aux différents états radiatifs de la boîte quantique.
- **Un spectre de photoluminescence résonnant (PL résonnante)** est une mesure d'intensité en fonction de l'énergie de détection, l'énergie d'excitation est égale à l'énergie de l'émission de la boîte quantique étudiée.
- **Un spectre d'excitation de la photoluminescence (PLE)** est une mesure d'intensité en fonction de l'énergie d'excitation, l'énergie de détection étant fixée au cours de la mesure. Ce spectre est similaire à un spectre d'absorption de la boîte quantique.
- **Un spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante (PLE résonnante)** est une mesure d'intensité en fonction de l'énergie d'excitation qui varie dans une fenêtre de l'ordre de 100 μeV centrée autour de l'énergie de détection, l'énergie de détection étant fixée au cours de la mesure. Comme la fenêtre 100 μeV est plus petite que la résolution de la détection³, ce spectre est donc équivalent à un spectre de diffusion Rayleigh résonnante (DRR) où l'énergie de détection est toujours égale à l'énergie du laser.

Dans la pratique, nous utilisons uniquement la caméra CCD pour réaliser les spectres de PL. En effet, la dispersion sur la barrette CCD correspondant au gradient de l'énergie de détection, chaque image donnée par la CCD pendant la durée d'acquisition est un spectre de PL. Dans le cas d'un spectre de PL non résonnante, l'excitation est réalisée par le laser HeNe (i.e. excitation dans la barrière GaAs) par la voie confocale du montage, ou bien par le laser Ti :Sa (i.e.

2. i.e. l'abréviation en anglais de Charge-Coupled Device

3. 140 μeV pour la détection par la caméra CCD, et 0.5 meV pour celle par la photodiode à avalanche

excitation dans la couche de mouillage) par la voie fibrée. Pour un spectre de PL résonnante, l'excitation est faite par la diode laser par la voie fibrée.

Contrairement aux mesures de PL, celles de PLE ne nécessitent pas une très bonne résolution de détection puisque l'énergie de détection est fixée. Pour bénéficier d'une meilleure efficacité quantique et d'un bruit plus bas, nous utilisons donc uniquement la photodiode à avalanche pour réaliser les spectres de PLE. La résolution spectrale de PLE est imposée par la largeur du laser d'excitation et le pas d'accordabilité. Dans le cas d'un spectre de PLE non résonnante où l'excitation est faite par le laser Ti :Sa, l'absorption de la boîte quantique est mesurée, et en particulier celle des états $P_h - P_e$, des états croisés et de la couche de mouillage. Ces derniers ont des largeurs suffisantes pour être résolues par le laser Ti :Sa en continu. Dans le cas d'un spectre de PLE résonnante, le spectre d'absorption est caractérisé par la largeur radiative de l'exciton qui est de l'ordre de quelques μeV . Il est alors plus favorable d'exciter le système avec la diode laser qu'avec le Ti :Sa pour avoir une meilleure résolution spectrale.

2.3 Spectroscopie par transformée de Fourier

Le montage de micro-photoluminescence présenté dans la section précédente donne accès au spectre des états radiatifs d'une boîte quantique unique, mais sa résolution de $140 \mu eV$ ne permet pas de résoudre la structure fine de ces états (de l'ordre de quelques μeV à quelques dizaines de μeV). Afin d'y avoir accès, nous avons mis en place un montage de spectroscopie par transformée de Fourier dont la résolution spectrale peut atteindre $0.5 \mu eV$.

2.3.1 Principe

La spectroscopie par transformée de Fourier permet d'accéder au spectre d'émission $\mathcal{I}(\omega)$ grâce à la mesure de la fonction de corrélation d'ordre 1, $g^{(1)}(\tau)$. Cette dernière est déduite du contraste de l'interférogramme mesuré par un interféromètre de Michelson où le signal interfère avec lui-même. Le spectre est en effet directement obtenu en effectuant la transformée de Fourier de $g^{(1)}(\tau)$.

D'une part, la fonction de corrélation d'ordre 1 non normalisée $g^{(1)}(\tau)$ est définie par [112] :

$$\begin{aligned} g^{(1)}(\tau) &\equiv \langle E^-(r, t + \tau) E^+(r, t) \rangle \\ &= TF(\mathcal{I}(\omega)) \end{aligned} \quad (2.1)$$

où $E^\pm(r, t)$ sont les opérateurs de champ électrique de l'émission en représentation quantique, et $\mathcal{I}(\omega)$ la densité spectrale d'intensité de l'émission.

D'autre part, l'interférogramme sur l'émission d'une boîte quantique est de la forme $1 + C(\tau) \cos(\omega_0\tau + \phi)$, où ω_0 est la fréquence centrale et τ le retard

entre les deux bras de l'interféromètre de Michelson. Comme le terme d'interférence $C(\tau)\cos(\omega_0\tau)$ est donné par les termes croisés dans le développement de $|E(r, t) + E(r, t + \tau)|^2$, nous déduisons en représentation classique que :

$$\begin{aligned} C(\tau)\cos(\omega_0\tau + \phi) &\propto \int_0^T [E(r, t)E^*(r, t + \tau) + E(r, t + \tau)E^*(r, t)] dt \\ &\propto \text{Re} \left[\int_0^T E(r, t)E^*(r, t + \tau) dt \right] \end{aligned} \quad (2.2)$$

Le temps d'intégration de notre détecteur est égal à 1 s, ce qui est très grand par rapport à la période du champ électrique (~ 3 fs). D'où :

$$C(\tau)\cos(\omega_0\tau + \phi) \propto \text{Re} \left[\langle E(r, t)E^*(r, t + \tau) \rangle \right] \quad (2.3)$$

En représentation quantique avec les opérateurs de champs, nous obtenons :

$$\begin{aligned} C(\tau)\cos(\omega_0\tau + \phi) &\propto \text{Re} \left[\langle E^-(r, t)E^+(r, t + \tau) \rangle \right] \\ &\propto \text{Re} (g^{(1)}(\tau)) \end{aligned} \quad (2.4)$$

Or, nous pouvons montrer que pour une boîte quantique unique (voir la partie 3.1.2c) : $g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0\tau} |g^{(1)}(\tau)|$. Ainsi $\phi = 0$ et :

$$\boxed{C(\tau) \propto |g^{(1)}(\tau)| = |TF(\mathcal{I}(\omega))|} \quad (2.5)$$

Par conséquent, la mesure expérimentale du contraste $C(\tau)$ fournit directement la fonction $g^{(1)}(\tau)$ et donc le spectre $\mathcal{I}(\omega)$ par transformée de Fourier inverse. A titre d'exemple, la figure 2.6(a) représente l'interférogramme théorique d'une émission à 900 nm dont le profil est une Lorentzienne de largeur 20 ps^{-1} . La fonction contraste de cet interférogramme est une exponentielle décroissante de type $C(\tau) = e^{-\tau/100}$. Le spectre $\mathcal{I}(\omega)$ de cette émission obtenu par transformée de Fourier est représenté sur la figure 2.6(b).

2.3.2 Montage optique

Le montage de l'interféromètre de Michelson est représenté sur la figure 2.7, où seule la partie détection est modifiée par rapport au montage de micro-photoluminescence :

- Le signal de détection est séparé en deux par une lame séparatrice 50/50. Chaque faisceau est envoyé vers un bras de Michelson.
- Les deux miroirs utilisés dans l'interféromètre sont deux coins de cube rétro-rélecteurs. Un de ces coins de cube est monté sur une ligne à retard tandis que le deuxième est fixe.

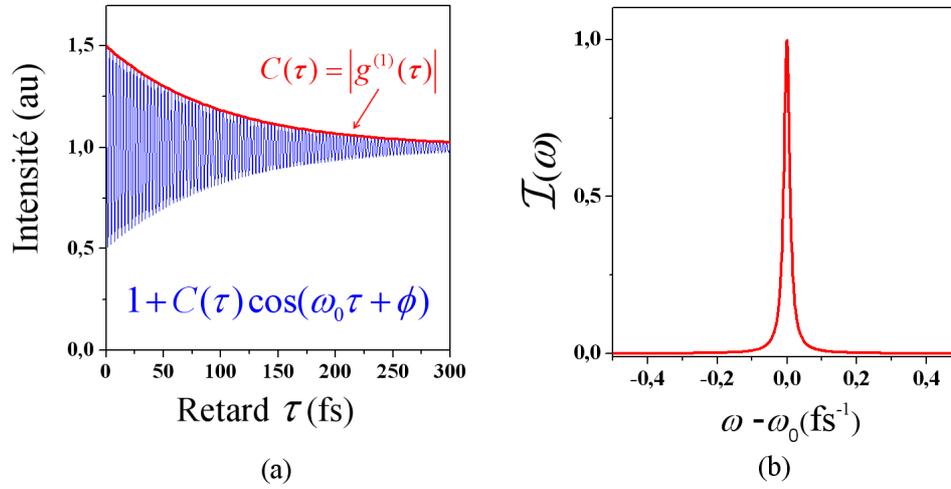


FIGURE 2.6 – (a) Interférogramme théorique d'une raie centrée à 900 nm, de profil lorentzien et de largeur 20 ps^{-1} . (b) Spectre théorique obtenu par transformée de Fourier de $C(\tau)$.

- La ligne à retard a une course correspondant à un retard de 2.6 ns. Ce retard maximal correspond à une résolution de $0.5 \mu\text{eV}$ pour les longueurs d'ondes d'émission de nos boîtes quantiques. Le déplacement de la ligne à retard se fait à l'aide d'un moteur pas à pas dont le pas minimum est égal à 0.66 fs.
- Le spectromètre du montage de micro-photoluminescence est utilisé pour sélectionner l'émission de la boîte quantique d'étude, et le signal est mesuré par la photodiode à avalanche.

2.4 Mesure des corrélations en intensité

Le spectre de fluorescence de boîte quantique peut être désormais mesuré avec une grande résolution grâce à l'interféromètre de Michelson présenté dans la section précédente. Cependant, cette mesure ne donne aucune information sur la nature quantique de l'émission d'une boîte quantique unique ainsi que sur les corrélations entre les émissions de différents complexes excitoniques d'une même boîte quantique. Pour avoir accès à ces informations, nous avons mis en place un montage de corrélation de photons de type Hanbury-Brown and Twiss. Ce montage est utilisé pour mesurer la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre en intensité de l'émission d'une boîte unique ainsi que la fonction de corrélation croisée entre les émissions de deux complexes excitoniques d'une seule boîte quantique.

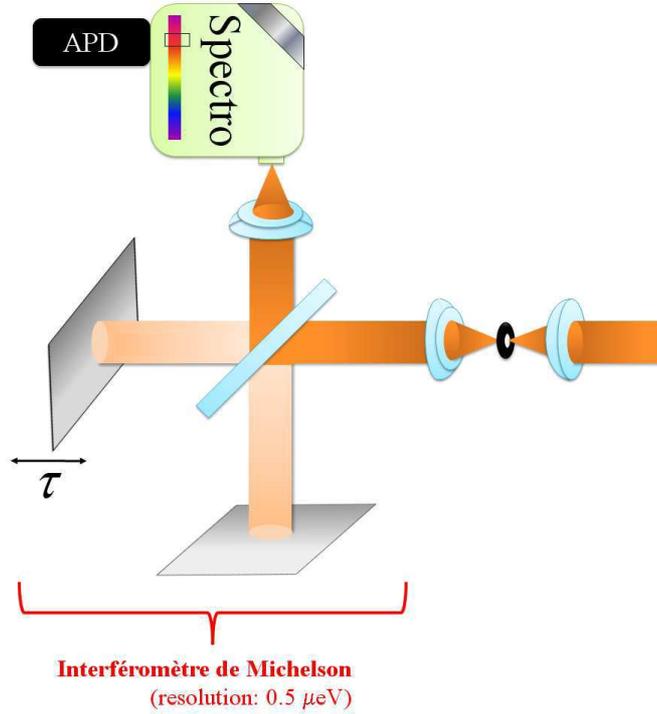


FIGURE 2.7 – Montage optique de l'interféromètre de Michelson.

2.4.1 Principe

2.4.1.a Fonction de corrélation d'ordre 2

La fonction de corrélation en intensité d'ordre 2 est définie classiquement pour deux intensités I_1 et I_2 par :

$$g_{12}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_1(t)I_2(t + \tau) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle} \quad (2.6)$$

En physique quantique, cette définition devient [112] :

$$g_{12}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I_1(t)I_2(t + \tau) : \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle} = \frac{\langle a_1^\dagger(t)a_2^\dagger(t + \tau)a_2(t + \tau)a_1(t) \rangle}{\langle a_1^\dagger a_1 \rangle \langle a_2^\dagger a_2 \rangle} \quad (2.7)$$

où a_1 et a_2 (respectivement a_1^\dagger et a_2^\dagger) sont les opérateurs d'annihilation (de création) de photon pour les deux types de photons. La notation $: \dots :$ fait référence à l'écriture des opérateurs selon l'ordre normal (i.e. les opérateurs d'annihilation sont à droite et les opérateurs de création sont à gauche).

Interprétation physique : $g_{12}^{(2)}(\tau)$ est la probabilité de détecter un photon de type 2 à l'instant τ sachant qu'un photon de type 1 a été détecté à l'instant 0. Si les deux signaux détectés proviennent de la même émission, la fonction mesurée est une fonction d'auto-corrélation. Si les deux signaux détectés proviennent de deux émissions différentes, il s'agit de corrélations croisées.

Dans le cas d'une auto-corrélation, les indices peuvent être volontairement supprimés et :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I(t)I(t+\tau) : \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} = \frac{\langle a^\dagger(t)a^\dagger(t+\tau)a(t+\tau)a(t) \rangle}{\langle a^\dagger a \rangle^2} \quad (2.8)$$

Nous obtenons donc directement :

$$g^{(2)}(-\tau) = g^{(2)}(\tau) \quad (2.9)$$

$$g^{(2)}(\infty) = 1 \quad (2.10)$$

Pour un système à deux niveaux, la probabilité de détecter un photon à l'instant τ est proportionnelle à la population du niveau excité $|e\rangle$, et donc à l'élément $\rho_{ee}(\tau)$ de la matrice densité. De même, la probabilité de détecter un photon à l'instant 0 est proportionnelle à la probabilité d'avoir le système dans son état fondamental $|g\rangle$, et donc à $\rho_{gg}(0) = 1$. Nous pouvons donc calculer la fonction d'auto-corrélation d'un système à deux niveaux à partir de :

$$g^{(2)}(\tau \geq 0) = \frac{\rho_{ee}(\tau)}{\rho_{ee}(\infty)} \Bigg|_{\rho_{gg}(0)=1} \quad (2.11)$$

La quantité $\rho_{ee}(\infty)$ au dénominateur est pour la normalisation de la fonction $g^{(2)}(\tau)$. Or, d'après l'équation (2.8), $g^{(2)}(\tau)$ est une fonction paire, alors :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\rho_{ee}(|\tau|)}{\rho_{ee}(\infty)} \Bigg|_{\rho_{gg}(0)=1} \quad (2.12)$$

2.4.1.b Phénomène de dégroupement de photons

Pour une lumière classique arbitraire, il est facile de déduire à partir de la définition classique (2.6) de la fonction d'auto-corrélation que [112] :

$$g^{(2)\text{classique}}(0) \geq 1 \quad (2.13)$$

$$g^{(2)\text{classique}}(0) \geq g^{(2)\text{classique}}(\tau) \quad (2.14)$$

L'inégalité (2.14) montre alors que la probabilité de détecter deux photons simultanément est plus grande que la probabilité de détecter deux photons à un retard

non nul, ce qui signifie que les photons tendent à se propager par paquet de photons. Ce phénomène est appelé groupement de photons ou *photon bunching* en anglais. Les inégalités (2.13) et (2.14) sont utilisées pour caractériser une source classique. Nous allons voir que celles-ci ne sont plus vérifiées dans le cas d'une source quantique. En particulier, la violation de l'inégalité (2.14) est reliée au phénomène de dégroupement de photons ou *photon antibunching* en anglais.

En effet, en appliquant la définition quantique (2.8) à un état de Fock n photons $|n\rangle$, la fonction de corrélation d'ordre 2 à $\tau = 0$ s'écrit :

$$g^{(2)|n\rangle}(0) = \frac{n(n-1)}{n^2} \quad (2.15)$$

Par conséquent, $g^{(2)|n\rangle}(0) < 1$ dès que $n \geq 1$, ce qui n'est jamais le cas pour une lumière classique. De plus, pour une source de photons uniques (i.e. $n=1$), $g^{(2)|1\rangle}(0) = 0$. Il est donc impossible de détecter simultanément deux photons issus d'une source de photons uniques car les photons sont émis un par un. Il s'agit du phénomène d'antibunching.

Un exemple typique où le du phénomène d'antibunching est celui de système

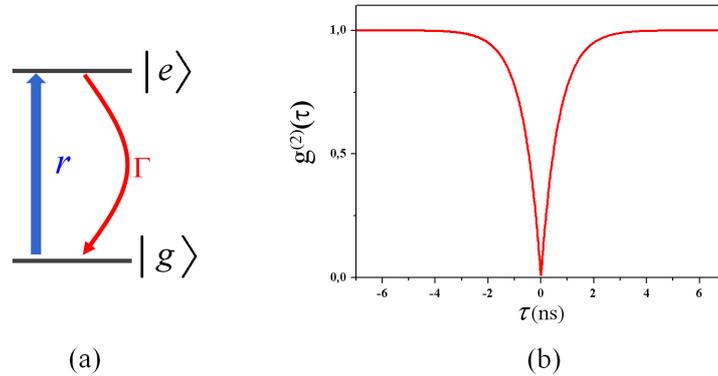


FIGURE 2.8 – (a) Schéma d'un système à deux niveaux sous excitation non-résonnante. (b) Calcul de la fonction d'auto-corrélation pour un système à deux niveaux sous excitation non-résonnante dans le cas où $\Gamma = 1\text{ns}^{-1}$ et $r = 0.5\text{ns}^{-1}$.

à deux niveaux sous excitation non-résonnante (le cas de l'excitation résonnante sera traité dans le chapitre 3). Considérons un système à deux niveaux de taux de recombinaison radiative Γ (i.e. $\Gamma = 1/T_1$), excité de façon non-résonnante avec un taux de pompage r (figure 2.8(a)). L'évolution du système est régi par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{ee}}{dt} &= -\Gamma\rho_{ee} + r\rho_{gg} \\ \rho_{gg} &= 1 - \rho_{ee} \end{aligned} \quad (2.16)$$

La solution de ce système à deux équations est $\rho_{ee}(t) = 1 - \rho_{gg}(0).e^{-(r+\Gamma)t}$. A partir de la relation (2.12), nous obtenons :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-(r+\Gamma)|\tau|} \quad (2.17)$$

Il apparaît un creux d'antibunching à $\tau = 0$ tel que $g^{(2)}(0) = 0$, comme illustré sur la figure 2.8(b). Le temps caractéristique du creux est égale à $(r + \Gamma)^{-1}$

Un cas particulier de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ concerne les sources cohérentes telles qu'une source laser continue monomode. En effet, pour une lumière cohérente, $g^{(2)}(\tau) = 1$ pour tout temps τ .

2.4.2 Montage optique

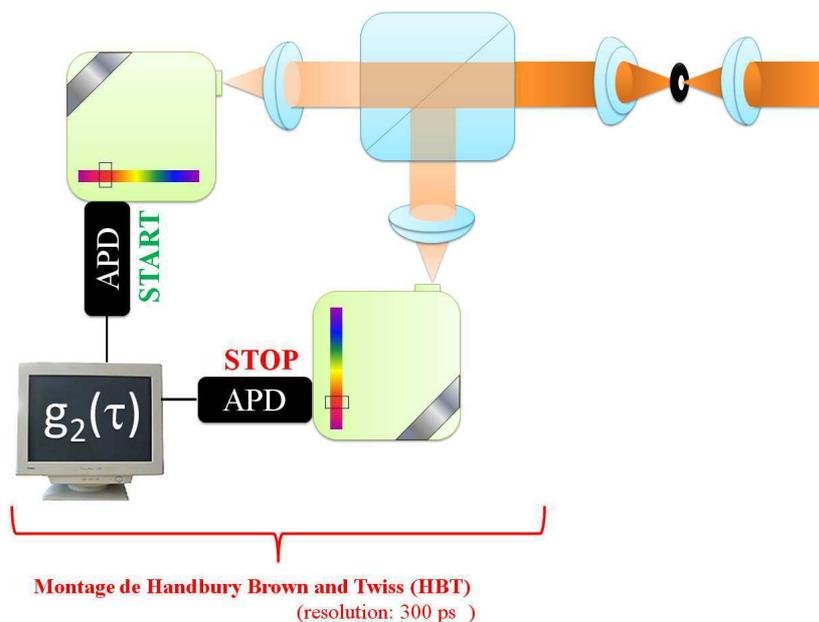


FIGURE 2.9 – Montage optique de type Hanbury-Brown and Twiss pour les mesures de corrélations en intensité d'ordre 2.

Nous utilisons un montage de type Hanbury-Brown and Twiss (HBT) pour mesurer la fonction de corrélation du deuxième ordre, dont le principe est le suivant :(voir figure 2.9) :

- Le signal émis est divisé par un cube séparateur 50/50. Après le cube, chaque composante est envoyée vers deux spectromètres (deux monochromateurs Jobin-Yvon). A la sortie des spectromètres, les signaux sont détectés par deux photodiodes à avalanche (SPCM-AQRH de Perkin Elmer).

- Les impulsions délivrées par les photodiodes à avalanche sont envoyées vers les entrées START et STOP d'une carte d'acquisition (SPC-630 de Becker&Hickl GmbH) qui est connectée à l'ordinateur. Cette carte d'acquisition a pour fonction de construire un histogramme pendant le temps d'intégration T . Les détails du fonctionnement de la carte d'acquisition sont décrits dans la section suivante.

2.4.3 Construction d'un histogramme par la carte d'acquisition

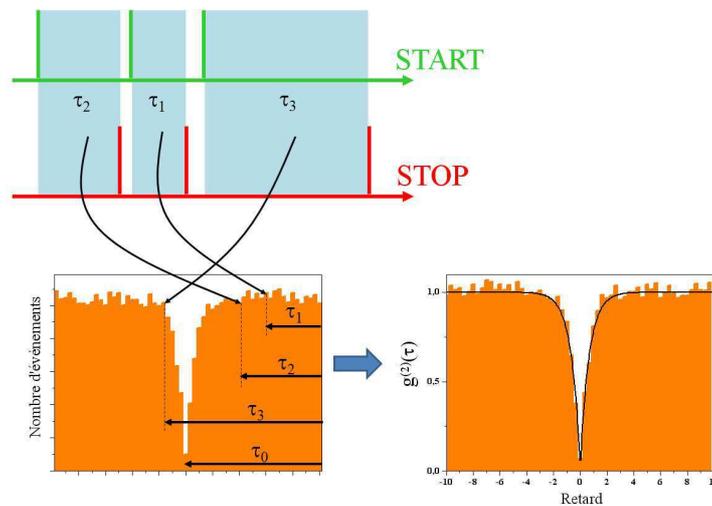


FIGURE 2.10 – Un événement sur l'histogramme correspond à deux détections, le premier photon étant détecté par la photodiode START et le deuxième par la photodiode STOP.

Lorsqu'un photon est détecté dans la voie START, la carte d'acquisition déclenche une horloge qui s'arrête dès qu'un autre photon est détecté dans la voie STOP. Ces deux détections consécutives comptent comme un événement dans l'histogramme. Cet événement correspond à un certain retard τ mesuré par l'horloge (figure 2.10).

La probabilité d'observer un événement est donc égale à la probabilité de détecter un photon dans la voie STOP avec un retard τ en sachant qu'un photon a été détecté dans la voie START à $t=0$. L'histogramme fournit donc a priori l'allure de la fonction de corrélation du deuxième ordre entre les photons détectés par les deux photodiodes à avalanche. L'enregistrement de l'histogramme se fait par convention pour des retards qui sont reportés de droite à gauche. De plus, l'abscisse temporelle est translatée d'une quantité τ_0 correspondant au retard relatif introduit par la différence de longueurs des câbles reliant les photodiodes à la carte. Compte tenu de ces paramètres, il est important de placer le zéro au retard

τ_0 , inverser le signe de l'abscisse et procéder à la normalisation des données pour obtenir la fonction de corrélation du deuxième ordre (figure 2.10).

Dans le cas d'une source de photons uniques réelle telle qu'une boîte quantique unique, il est très difficile d'observer expérimentalement $g^{(2)}(0) = 0$ à cause de la résolution temporelle des photodiodes qui est de 300 ps. En pratique, le critère expérimental utilisé pour montrer que la boîte quantique est une source de photons uniques est $g^{(2)}(0) < 1/2$ puisque, d'après (2.15), $g^{(2)}(0) = 1/2$ pour une source à deux photons. De plus, il est important de convoluer la courbe du calcul théorique avec la fonction de réponse des photodiodes pour obtenir la courbe d'ajustement des données expérimentales (figure 2.10).

2.5 Photoluminescence résolue en temps

Des expériences de photoluminescence résolue en temps ont également été réalisées pour mesurer les temps caractéristiques des processus de dépopulation du niveau excité de la boîte (i.e. le temps de vie radiatif T_1 , le temps de spin-flip pour passer de l'exciton brillant à l'exciton noir, etc.).

2.5.1 Principe

A l'instant initial, une impulsion laser prépare la boîte dans son état excité $|e\rangle$ qui relaxe ensuite vers son état fondamental $|g\rangle$. Si le taux de répétition du laser est très grand devant le temps de vie radiatif T_1 de la boîte, celle-ci ne peut pas être à nouveau dans son état excité avant une complète relaxation vers son état fondamental. Pour l'impulsion suivante, la boîte est dans son état fondamental et le cycle recommence. Une mesure de l'intensité d'émission en fonction du temps entre deux impulsions consécutives fournit directement l'information sur la population de l'état excité. En pratique, la mesure est déclenchée à l'arrivée de la première impulsion sur une photodiode de déclenchement servant de "trigger".

2.5.2 Montage optique

La carte d'acquisition utilisée pour les mesures de corrélations en intensité sert également à la mesure de la photoluminescence résolue en temps. La mesure commence lorsqu'un signal est détecté sur la photodiode de déclenchement et un histogramme, qui reflète la population de l'état excité, se construit. Le montage optique de la figure 2.11 présente les points essentiels suivants :

- Une partie du laser d'excitation Ti :Sa en mode pulsé est extraite par l'intermédiaire d'une lame de verre. La transmission ($\sim 96\%$ du laser) est injectée dans la fibre optique lentillée pour exciter l'échantillon tandis que la réflexion ($\sim 4\%$ du laser) est envoyée vers une photodiode rapide en silicium de déclenchement.

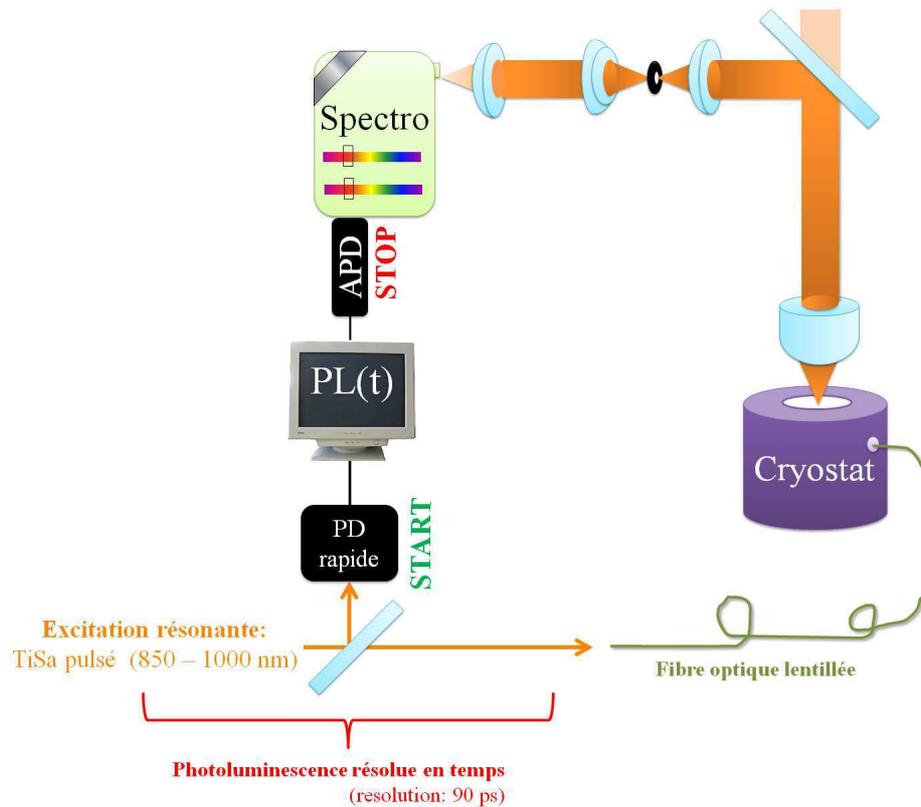


FIGURE 2.11 – Montage optique de photoluminescence résolue en temps

- Au niveau de la détection, le spectromètre Jobin-Yvon et la photodiode à avalanche Perkin Elmer sont remplacés par un double monochromateur soustractif (DK242) et une photodiode rapide IdQuantique. Grâce à ces modifications, la résolution temporelle atteint une valeur très élevée d'environ 90 ps malgré une diminution de l'intensité du signal détecté (la photodiode IdQuantique n'a qu'un diamètre de zone active de $25 \mu\text{m}$ et une efficacité quantique de 10 % aux longueurs d'onde d'étude).
- Les signaux délivrés par la photodiode rapide et par la photodiode à avalanche sont envoyés respectivement sur les voies START et STOP de la carte d'acquisition. Celle-ci enregistre un histogramme dont le principe de construction est le même que celui décrit dans la section précédente. Cet histogramme représente alors la probabilité de détecter un photon émis par la boîte quantique en fonction d'un retard τ après l'arrivée d'une première impulsion laser. Il s'agit de la population de l'état excité de la boîte quantique en fonction du temps.

2.6 Mesures préliminaires de caractérisation

2.6.1 Spectre de PL non-résonnante

Les spectres de photoluminescence non-résonnante de boîtes quantiques uniques sont réalisés sous excitation laser HeNe dans la géométrie confocale et sont enregistrés par la caméra CCD. Sur ces spectres mesurés à 10K, nous observons pour

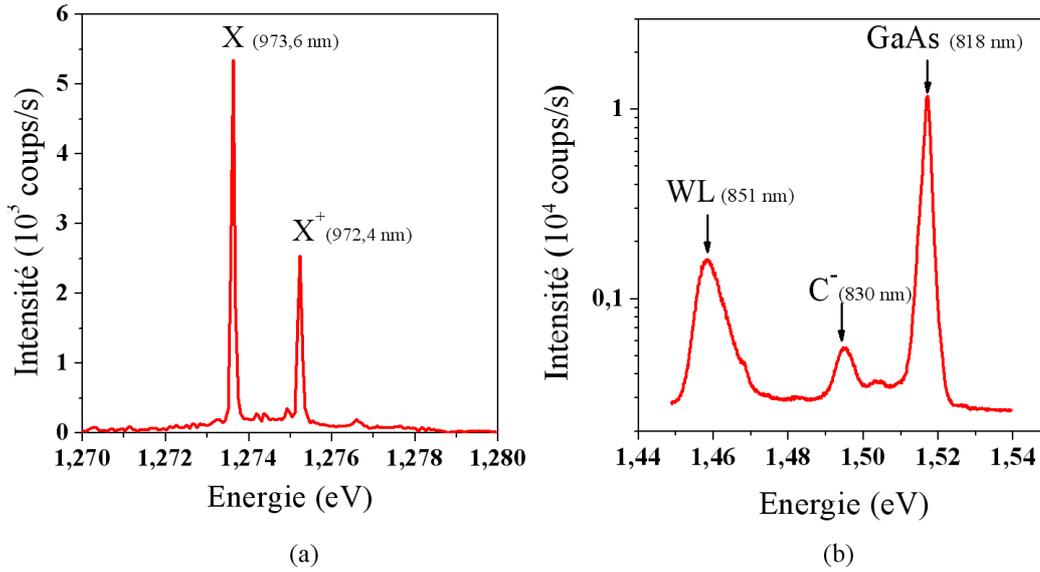


FIGURE 2.12 – (a) Spectre typique de photoluminescence non-résonnante de boîtes quantiques uniques à 10K. Le spectre présenté est celui de la boîte quantique QD2. (b) Spectre de photoluminescence non-résonnante du substrat GaAs, de la couche de mouillage InAs (WL) et des impuretés de carbone.

environ 90% des boîtes deux raies dont l'écart en énergie est de l'ordre de 1.5 meV. Des études en puissance et des mesures de corrélations (présentées à-après) permettent de distinguer les raies d'émission de l'exciton neutre (X) et de l'exciton chargé positivement (X⁺) d'une même boîte quantique. Sur la figure 2.12(a) est représenté un spectre de photoluminescence non-résonnante typique. C'est le spectre de la boîte quantique QD2 où les excitons neutre et chargé sont respectivement aux énergies $E_X = 1.2736$ eV et $E_{X^+} = 1.2752$ eV. Ces deux énergies se situent bien dans l'intervalle de détection permis par le mode de cavité (voir section 2.1.3). La présence de l'exciton chargé dans les spectres de photoluminescence non-résonnante montre que les boîtes quantiques de l'échantillon étudié capturent efficacement les trous résiduels présents dans l'environnement électrostatique des boîtes.

Sous excitation non-résonnante de la barrière, nous observons aussi la lumi-

nescence non-résonnante à haute énergie en dehors de la bande d'arrêt de la microcavité. Sur le spectre de la figure 2.12(b), nous observons trois raies à 1.52 eV, 1.495 eV et 1.46 eV. La raie à 1.52 eV (818 nm) correspond à l'émission de l'exciton massif du GaAs [123, 124]. La raie à 1.46 eV (851 nm) correspond à l'émission de la couche de mouillage InAs. La raie à 1.495 eV (830 nm) est dû à la recombinaison radiative des électrons libres du GaAs avec les trous liés aux accepteurs de carbone C^- qui sont les impuretés non-intentionnelles apparues lors de la croissance de l'échantillon [123, 124]. Ces impuretés C^- sont notamment responsables de la présence des trous résiduels dans l'échantillon.

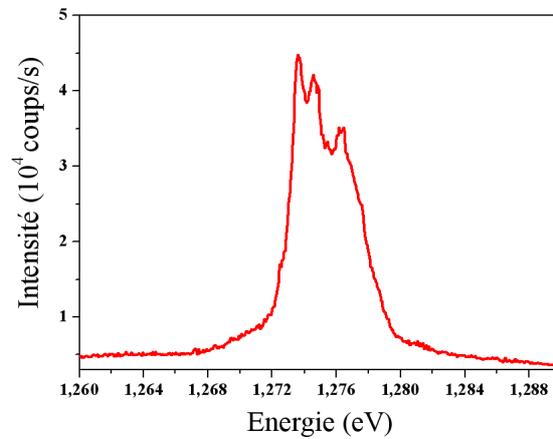


FIGURE 2.13 – Spectre du mode de cavité à 10K. Ce spectre est réalisé à très forte puissance d'excitation (100 fois supérieure à la puissance de saturation de l'émission de la boîte QD2).

Il est possible de mettre en évidence le mode de cavité en augmentant la puissance d'excitation. A très forte puissance, le laser peut exciter non seulement une boîte quantique située au centre du spot mais aussi celles situées au voisinage. De plus, sous forte puissance d'excitation, beaucoup de porteurs sont créés dans l'échantillon, ce qui augmente la probabilité d'observer les émissions des complexes excitoniques autres que l'exciton neutre. L'ensemble de ces raies d'émission est filtré par le mode de cavité, et est présenté sur la figure 2.13. Ce spectre est réalisé au même endroit que celui de la figure 2.12(a) mais à une puissance d'excitation beaucoup plus forte (100 fois supérieure à la puissance de saturation de l'émission de la boîte QD2). Ce spectre confirme que la cavité joue un rôle de filtre spectral de l'émission des boîtes quantiques. Ce filtre permet une transmission dans la fenêtre spectrale [1.27 eV - 1.28 eV], ce qui est plutôt en accord avec la prévision théorique de la section 2.1.3. Nous considérerons par la suite l'énergie centrale du spectre comme l'énergie effective du mode de cavité.

Etudes en puissance d'excitation

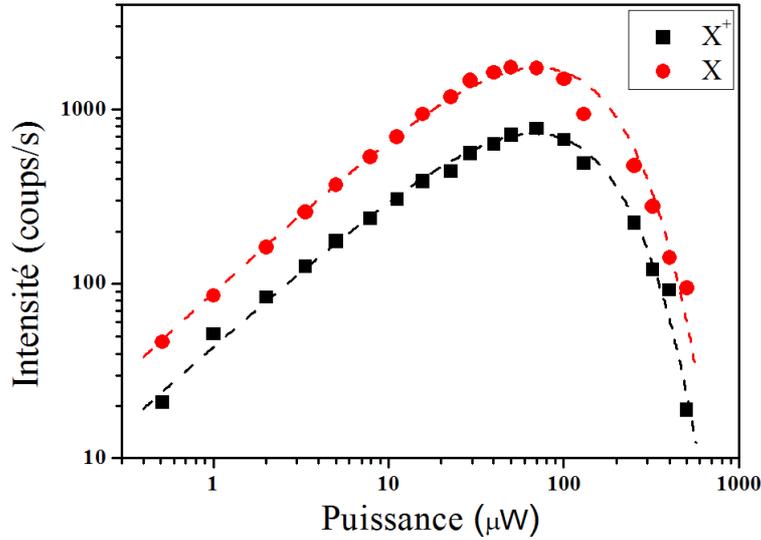


FIGURE 2.14 – Intensités d’émission de X et de X^+ de la boîte quantique QD2 en fonction de la puissance d’excitation.

La figure 2.14 présente l’intensité de photoluminescence de X et de X^+ de QD2 en fonction de la puissance d’excitation. Les dépendances en puissance de ces différentes raies permettent d’identifier chacune des raies comme l’exciton neutre et l’exciton chargé positivement. D’après la théorie de population aléatoire de M. Grundmann *et al* [125] qui considère une distribution poissonnienne pour les complexes excitoniques, les populations d’exciton neutre et d’exciton chargé sont données par [125, 126] :

$$n_X = \langle n \rangle \cdot e^{\langle n \rangle} \quad (2.18)$$

$$n_{X^\pm} = \langle n \rangle^\gamma \cdot e^{\langle n \rangle} \quad (2.19)$$

où $\langle n \rangle$ est le nombre de paires électron-trou dans la boîte quantique. $\langle n \rangle$ dépend de la puissance d’excitation suivant la loi phénoménologique $\langle n \rangle \propto p^\beta$ [126]. La constante β est imposée par les mécanismes de capture de charges de la barrière GaAs dans la boîte quantique (captures assistées par phonons ou par effet Auger) que nous présentons dans le chapitre 4. De plus, $\gamma \approx 1.5$ si la charge résiduelle de l’exciton chargé est photo-injectée dans la boîte quantique, et $\gamma \approx 1$ si celle-ci provient d’un donneur ou d’un accepteur. En effet, si la charge résiduelle de l’exciton chargé est donné par une impureté, la dépendance en puissance de la population d’exciton neutre et d’exciton chargé est la même car une paire électron-trou photo-injectée peut être attribuée soit à un exciton neutre, soit à un exciton chargé⁴.

4. La troisième charge d’exciton chargé est une charge résiduelle fourni par les accepteurs de carbone.

Sur la figure 2.14, les intensités de X et de X^+ $I_X(p)$ et $I_{X^+}(p)$ sont parfaitement ajustées respectivement par les équations (2.18) et (2.19) avec $\beta = 0.93$ et $\gamma = 0.96$. Il en résulte que X est bien un exciton neutre et X^+ un exciton chargé. Enfin, comme $E_X < E_{X^+}$ (cf. figure 2.12), X^+ est un exciton chargé positivement (voir la section 1.2.3 du chapitre 1). Comme $\gamma \approx 1$ dans notre échantillon, le trou résiduel de X^+ n'est pas photo-injecté dans la boîte quantique mais est fourni par les accepteurs de carbone.

Etudes en température

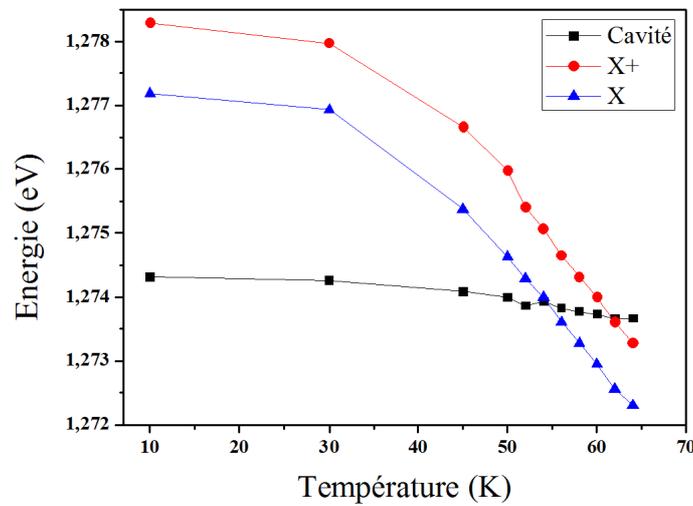


FIGURE 2.15 – Dépendance en température des énergies du mode de cavité et des raies d'émission X et X^+ .

La dépendance en température de l'émission des boîtes quantiques et du mode de cavité est également étudiée. Nous choisissons ici de présenter les résultats obtenus sur la boîte QD3 (cf. figure 2.15) car l'énergie d'émission de cette boîte reste dans la fenêtre spectrale de détection pour une large gamme de températures. Nous constatons que les énergies de X et X^+ présentent la même dépendance en température qui est induite par la variation en température de l'énergie du gap de GaAs et d'InAs. L'énergie du mode de cavité dépend également de la température en raison de la dilatation thermique des épaisseurs des couches des miroirs de Bragg et de la dépendance en température des indices de réfraction. Bien que la nature de ces dépendances en température soit différente, les trois raies présentent toutes un décalage en énergie vers le rouge, appelé *red shift*. Les énergies de X et X^+ varient légèrement de 10K à 30K et dépendent fortement de la température à partir de 30K tandis que la dépendance en température de l'énergie du mode de cavité reste toujours très faible.

2.6.2 Spectre de PLE non-résonnante

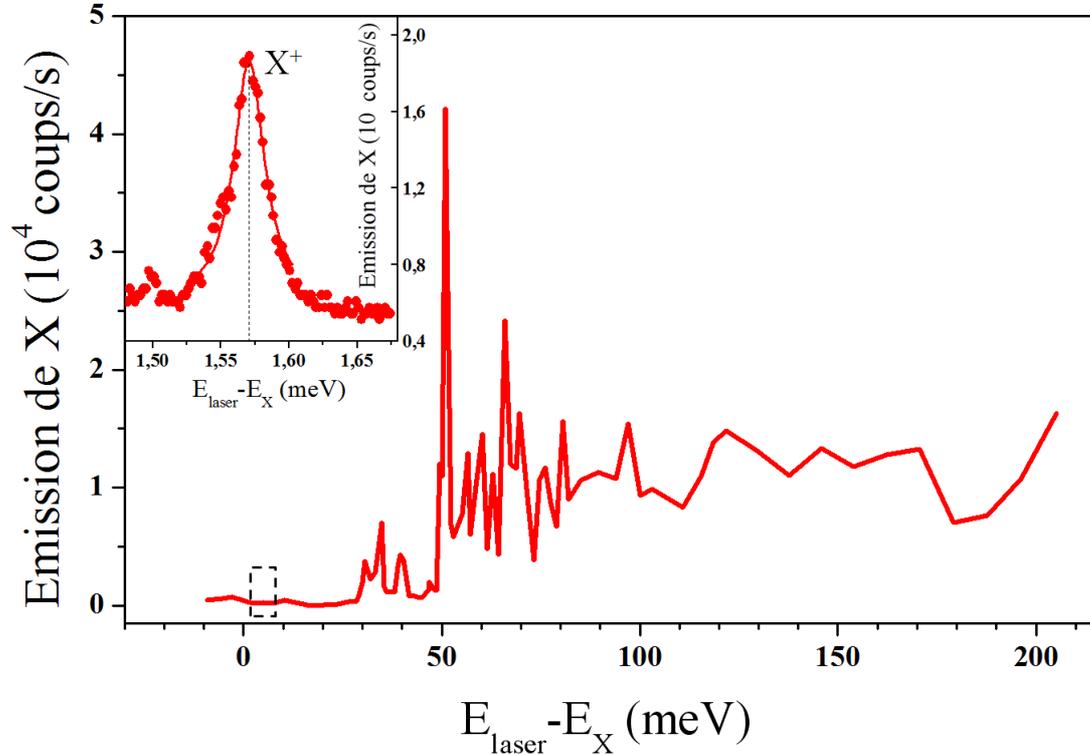


FIGURE 2.16 – Spectre de PLE non-résonnante de QD2.

Le laser Ti :Sa en mode continu est utilisé pour la mesure des spectres de PLE non-résonnante. Le spectre de PLE de QD2 est présenté sur la figure 2.16 où l'abscisse correspond au désaccord entre les énergies du laser et de l'exciton neutre, $\delta = E_{laser} - E_X$. Sur ce spectre de PLE, nous identifions les états de la couche de mouillage (le fond continu à partir de $\delta = 80 \text{ meV}$), les états croisés (la montée du fond continu de 50 meV à 80 meV), les raies de phonons LO de différents matériaux à 31 meV, 35 meV et 39 meV, et les états excités (les raies de 50 meV à 70 meV). A priori, il s'agit d'un spectre de PLE non-résonnante assez standard avec les états d'absorption habituels d'une boîte quantique [127]. Cependant, lorsque le Ti :Sa est remplacé par la diode laser, il apparaît à $\delta = 1.52 \text{ meV}$ la raie d'émission de l'exciton chargé X^+ de largeur $15 \mu\text{eV}$. Cette raie n'est pas observée dans la courbe initiale car le pas du Ti :Sa accessible est trop grand ($\sim 0.5 \text{ meV}$). Cette raie d'absorption montre que la boîte quantique est souvent occupée par un trou résiduel, ce qui constitue l'état fondamental pour l'absorption d'un photon à l'énergie de X^+ . Ce résultat est bien en accord avec le fait que le trou résiduel de X^+ n'est pas photo-injectée mais provient des impuretés C^- .

2.6.3 Photoluminescence non-résonnante résolue en temps

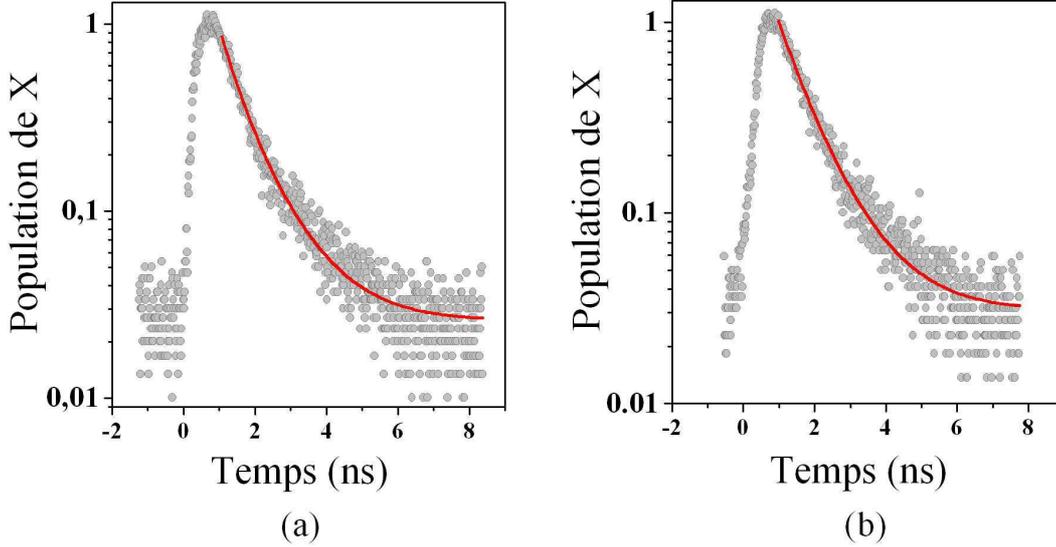


FIGURE 2.17 – Photoluminescence non-résonnante résolue en temps de QD1 (a) et QD2 (b). La boîte quantique QD1 est excitée dans l'état $1P_h - 1P_e$ tandis que la boîte QD2 est excitée dans la couche de mouillage. La déclin de la photoluminescence présente pour chaque boîte deux temps caractéristiques : un temps court qui est le temps de vie radiatif, et un temps long (1.2 ns) qui est un temps instrumental introduit par la photodiode IdQuaque. Les ajustements donnent $T_1^{QD1} = 505 \pm 79$ ps et $T_1^{QD2} = 605 \pm 43$ ps.

La figure 2.17 présente les mesures de photoluminescence non-résonnante résolue en temps de deux boîtes quantiques QD1 (2.17(a)) et QD2 (2.17(b)). La boîte QD1 est excitée à l'énergie d'un état excité à 55 meV de l'énergie de l'exciton neutre (~ 930 nm) tandis que QD2 est excitée par l'intermédiaire du continuum d'états de la couche de mouillage (~ 870 nm). Les figures sont interprétées de la façon suivante :

- L'instant 0 correspond à l'arrivée d'une impulsion laser. Comme nous supposons que le temps d'absorption est très court devant la résolution du montage d'environ 90 ps, l'instant 0 correspond en fait à la création d'une paire électron-trou dans le niveau excité.
- La montée correspond à la relaxation non radiative de cette paire électron-trou du niveau excité vers l'état $|1S_h - 1S_e\rangle$. La population de l'état $1S_h - 1S_e$ entraîne, aux temps courts, une augmentation de la photoluminescence.
- La décroissance correspond au dépeuplement de l'état excité. Cette décroissance est dominée par la relaxation radiative car les temps caractéristiques des processus non radiatifs sont très grands (~ 100 ns [128]) devant le temps de vie radiatif. Deux temps de déclin apparaissent sur chacune des figures : un temps court égal à 505 ± 79 ps pour QD1 et 605 ± 43 ps pour QD2 qui

correspond au temps de vie radiatif T_1 ; et un temps long d'environ 1.2 ns qui est un temps instrumental introduit par la photodiode IdQuantique (voir figure 2.18).

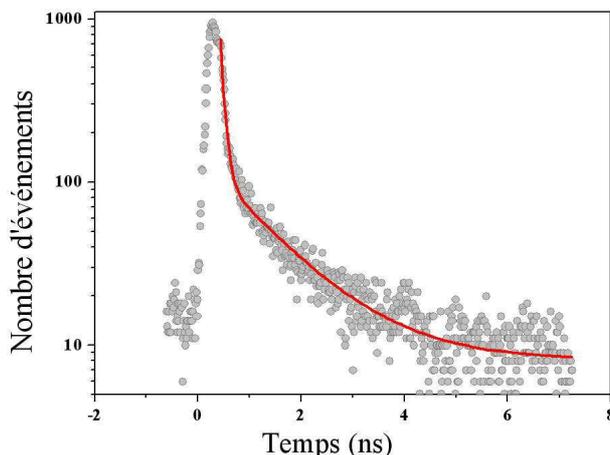


FIGURE 2.18 – *Mesure de la résolution du montage de photoluminescence résolue en temps. Le temps court de 90 ps est lié au temps de réponse de la photodiode IdQuantique et au déphasage introduit par le spectromètre. Le temps long de 1.2 ns est attribué à un défaut instrumental de la photodiode IdQuantique.*

La figure 2.18 présente la mesure de la résolution du montage de photoluminescence résolue en temps. Cette mesure est réalisée par le même montage optique mais la photodiode IdQuantique détecte ici la diffusion du laser Ti :Sa. Dans le cas d'une résolution idéale, le pic mesuré est l'image exacte de l'impulsion laser de largeur environ 2 ps. Dans la configuration réelle de notre détection, deux temps de décroissance apparaissent : un temps court de 90 ps qui est lié au temps de réponse de la photodiode IdQuantique et au déphasage introduit par le spectromètre, et un temps long de 1.2 ns qui est attribué à un défaut instrumental de la photodiode IdQuantique.

2.6.4 Mesures de corrélations du deuxième ordre

Les mesures de corrélations d'ordre 2 permettent non seulement de mettre en évidence la statistique d'émission des boîtes quantiques uniques mais aussi de vérifier si les raies de photoluminescence correspondent à l'émission d'une même boîte quantique, et de les identifier par ailleurs. Pour ce faire, nous réalisons les mesures d'auto-corrélation et de corrélation croisée des deux raies du spectre de photoluminescence de QD2 (cf. spectre de la figure 2.12). Les résultats de ces mesures de corrélation sont présentés sur la figure 2.19. Nous constatons que :

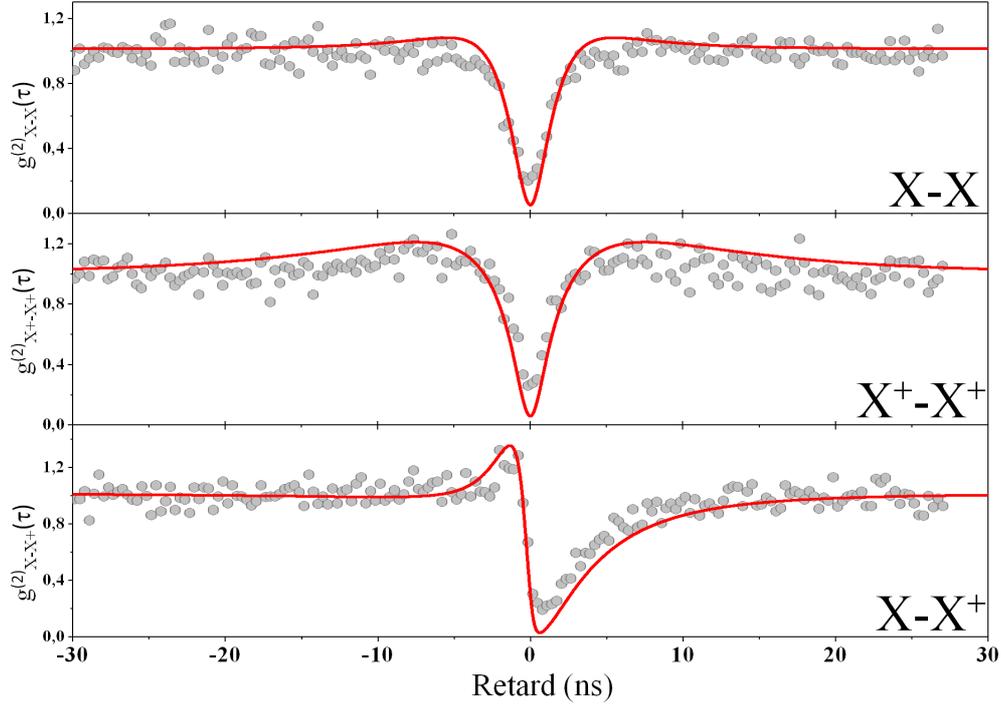


FIGURE 2.19 – Mesures d’auto-corrélation et de corrélation croisée des raies X et X^+ de la boîte quantique QD2.

- La mesure d’auto-corrélation du deuxième ordre de chaque raie présente un antibunching tel que $g_{X-X}^{(2)}(0) < 1/2$ et $g_{X^+-X^+}^{(2)}(0) < 1/2$. Chacune des raies correspond donc à l’émission d’une source de photons uniques.
- La mesure de corrélation croisée (la photodiode START mesure l’émission de X et la photodiode STOP mesure l’émission de X^+) présente également un antibunching tel que $g_{X-X^+}^{(2)}(0) < 1/2$. Les deux raies proviennent de la même source de photon unique et correspondent donc à deux états excitoniques de la même boîte quantique.
- Le creux d’antibunching de la mesure de corrélation croisée est asymétrique, avec une variation aux temps négatifs beaucoup plus rapide qu’aux temps positifs. L’interprétation est la suivante : la mesure de $g_{X-X^+}^{(2)}(\tau)$ aux temps positifs est la probabilité de détecter un photon X^+ après la détection d’un photon X , ce qui fait référence à un processus de capture de 3 charges pour le passage de la boîte de l’état $|vide\rangle$ vers l’état $|2S_h - 1S_e\rangle$. En revanche, la mesure de $g_{X-X^+}^{(2)}(\tau)$ aux temps négatifs est la probabilité de détecter un photon X après la détection d’un photon X^+ , ce qui est associé à un processus de capture d’une seule charge pour le passage de l’état $|1S_h - 0S_e\rangle$ vers l’état $|1S_h - 1S_e\rangle$. Le processus de capture de 3 charges étant intrinsèquement plus long que celui à une charge, la fonction $g_{X-X^+}^{(2)}(\tau)$ est asymétrique.

Les ajustements théoriques de ces mesures sont faits à partir du modèle de population aléatoire (MPA) que nous présentons dans la section 4.2.3 du chapitre 4.

2.7 Conclusion

Avec les différents montages optiques présentés, nous avons tous les outils nécessaires pour étudier la photoluminescence d'une boîte quantique unique résolue spectralement et temporellement. Les résultats obtenus pour une excitation non-résonnante montrent que la plupart de nos boîtes quantiques sont peuplées par une charge résiduelle (ici un trou) venant probablement d'un accepteur (les impuretés de carbones). Dans les chapitres suivants, nous étudions en détails ces mêmes boîtes quantique sous excitation résonnante et observons notamment l'influence de ce trou résiduel sur l'émission résonnante des boîtes.

Chapitre 3

Boîtes quantiques uniques sous excitation résonnante

Ce chapitre se compose d'une partie théorique suivie d'une partie expérimentale. Dans la première partie, nous étudions théoriquement l'émission d'une boîte quantique unique sous excitation résonnante pour différents régimes de puissance d'excitation. Les études comprennent notamment les dépendances en puissance d'excitation, les spectres d'émission associés ainsi que les fonctions de corrélation des premier et deuxième ordres. Nous évaluons en particulier le rapport entre les composantes cohérente et incohérente de l'émission résonnante. Les calculs sont tout d'abord présentés dans le cas de la limite radiative, puis dans le cas où la limite radiative n'est pas atteinte. Dans la deuxième partie, nous présentons les résultats expérimentaux sur l'émission résonnante d'une boîte quantique unique que nous comparons avec les prévisions théoriques. Nous présentons plus particulièrement les résultats sur les composantes cohérente et incohérente de l'émission résonnante qui sont respectivement reliées à la diffusion Rayleigh résonnante et à la photoluminescence résonnante. Nous montrons que le rapport entre ces deux composantes dépend principalement du régime de puissance d'excitation et du rapport $\frac{T_2}{2T_1}$ tandis que la statistique d'émission de la boîte quantique (i.e. émission de photons uniques) reste identique quel que soit le régime étudié. Finalement, dans le régime où la diffusion Rayleigh résonnante prédomine, nous montrons qu'une boîte quantique sous excitation résonnante constitue une source de photons uniques beaucoup plus cohérente que les sources semiconductrices de photons uniques existantes.

Sommaire

3.1	Approche théorique	76
3.1.1	Rayonnement dipolaire d'un système à deux niveaux sous excitation résonnante	76
3.1.2	Equations de Bloch optiques	80
3.1.3	Intensité intégrée spectralement de l'émission résonnante	81

3.1.4	Fonction de corrélation de premier ordre et spectre de l'émission résonnante	84
3.1.5	Fonction de corrélation de deuxième ordre et le dégrou- pement de photons à l'excitation résonnante	88
3.1.6	Résultats en dehors de la limite radiative	90
3.2	Résultats expérimentaux et discussions	93
3.2.1	Spectres de photoluminescence sous excitation quasi- résonnante et résonnante	93
3.2.2	Spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante	94
3.2.3	Etude en puissance d'excitation	95
3.2.4	Mesures du temps de vie radiatif	97
3.2.5	Fonction de corrélation du premier ordre - Spectre de l'émission résonnante	100
3.2.6	Fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre de l'émis- sion résonnante	105
3.2.7	Etude en fonction de la température - Elargissement et déphasage à la résonance	107
3.2.8	Structure fine et influence de l'environnement électro- statique	109
3.3	Conclusion	112

3.1 Approche théorique

3.1.1 Rayonnement dipolaire d'un système à deux niveaux sous excitation résonnante

3.1.1.a Introduction des notions physiques du couplage "lumière - matière"

Dans cette approche théorique¹, nous étudions l'émission d'une boîte quantique unique idéale, qui peut être considérée comme un système à deux niveaux dont l'énergie de transition est $\hbar\omega_0$, sous excitation résonnante par un laser continu. La largeur spectrale $\hbar\gamma$ du laser, de pulsation ω_L , est très petite par rapport à la largeur spectrale $\hbar\Gamma = \frac{2\hbar}{T_2}$ de l'exciton. Par conséquent, le spectre du laser peut être modélisé dans l'ensemble des calculs par une fonction delta de Dirac centrée en $\omega_L \approx \omega_0$. Nous négligeons également dans un premier temps l'ensemble des phénomènes non-radiatifs et considérons donc la limite radiative $T_1 = T_2/2 = 1/\Gamma$.

Les états propres du système sont des états mixtes entre les états du champ électromagnétique (i.e. les états de Fock $|n\rangle$) et les états de la boîte quantique

1. Les calculs détaillés de cette partie sont présentés dans l'annexe A

(i.e. l'état fondamental $|g\rangle$ et l'état excité $|e\rangle$ d'un système à deux niveaux). Le Hamiltonian du système comprend donc trois termes qui correspondent au système à deux niveaux au champ électromagnétique et au terme d'interaction dipolaire. Le dernier décrit le couplage lumière-matière. Cet Hamiltonian s'écrit comme [129] :

$$H = \underbrace{\frac{1}{2}\hbar\omega_0\sigma_z}_{\text{boîte quantique}} + \underbrace{\hbar\omega_L a^\dagger a}_{\text{champ EM}} + \underbrace{\hbar g(\sigma_+ a + \sigma_- a^\dagger)}_{\text{couplage lumière-matière}} \quad (3.1)$$

où g est l'élément de la matrice du couplage dipolaire entre le système à deux niveaux avec le champ électromagnétique, et les opérateurs σ_\pm et σ_z sont définis par :

$$\begin{cases} \sigma_z &= |e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g| \\ \sigma_- &= |g\rangle\langle e| \\ \sigma_+ &= |e\rangle\langle g| \end{cases} \quad (3.2)$$

Nous remarquons que σ_\pm et σ_z vérifie l'algèbre de spin $1/2$ de Pauli, telle que :

$$\begin{cases} [\sigma_-, \sigma_+] &= -\sigma_z \\ [\sigma_-, \sigma_z] &= 2\sigma_- \end{cases} \quad (3.3)$$

Dans le référentiel tournant à la fréquence ω_L , ce spin fictif $1/2$ est analogue à un spin fictif $1/2$, \mathbf{S} , tel que :

$$\begin{cases} S_z &= \sigma_z \\ S_+ &= \sigma_+ e^{-i\omega_L t} \\ S_- &= \sigma_- e^{+i\omega_L t} \end{cases} \quad (3.4)$$

La population du système à deux niveaux est décrite par σ_z ou bien S_z . En effet, d'après les équations (3.2), la population de l'état fondamental et de l'état excité peuvent se calculer par :

$$\begin{cases} |g\rangle\langle g| &= \frac{1-\sigma_z}{2} \\ |e\rangle\langle e| &= \frac{1+\sigma_z}{2} \end{cases} \quad (3.5)$$

D'autre part, le moment dipolaire est décrit par σ_\pm ou bien S_\pm , tel que [129] :

$$D = D^+ + D^- \quad (3.6)$$

avec

$$D^\pm = g \sqrt{\frac{2\hbar\epsilon_0 V}{\omega_L}} \sigma_\pm \quad (3.7)$$

où V est le volume effective du mode de champ électromagnétique du laser d'excitation.

3.1.1.b Rayonnement dipolaire - d'une description classique à une description quantique

En physique classique, l'intensité d'une onde électromagnétique est proportionnelle au carré de la norme du champ électrique telle que $I \propto |E(r, t)|^2$. En physique quantique, lorsque le champ électrique $E(r, t)$ est remplacé par l'opérateur $E(r, t) = E^+(r, t) + E^-(r, t)$ où $E^\pm(r, t)$ sont les opérateurs de champ électrique [129], cette intensité devient, par analogie avec le cas classique :

$$\mathfrak{I}(t) \propto \langle E^-(r, t)E^+(r, t) \rangle \quad (3.8)$$

Pour l'intensité d'émission d'un système à deux niveaux, le champ électrique détecté est le rayonnement dipolaire. Comme les opérateurs $E^\pm(r, t)$ satisfont aux équations de Maxwell au même titre que le champ électrique classique $E(r, t)$, la relation entre les opérateurs de champ $E^\pm(r, t)$ et les opérateurs $D^\pm(r, t)$ de moment dipolaire se déduit par analogie avec la théorie d'électromagnétisme classique, telle que :

$$E^\pm(r, t) \propto \frac{\omega_0^2}{r} D^\mp \left(t - \frac{r}{c} \right) \quad (3.9)$$

où les opérateurs dipolaires D_\mp sont définis par (3.7). Alors :

$$\mathfrak{I}(t) \propto \langle S_+(t)S_-(t) \rangle \quad (3.10)$$

Dans le cas réaliste où le temps d'intégration du détecteur T est très grand devant le temps de vie du système à deux niveaux T_1 ($T \gg T_1$), le détecteur mesure uniquement l'intensité en régime stationnaire. L'intensité détectée peut alors s'écrire comme :

$$I \propto \int_0^T \mathfrak{I}(t) dt \approx T \cdot \mathfrak{I}_{st} \quad (3.11)$$

$$\Rightarrow \boxed{I \propto \langle S_+(t)S_-(t) \rangle_{st}} \quad (3.12)$$

Afin de bien décrire l'évolution de $S_\pm(t)$, il est en fait indispensable de considérer les *fluctuations du vide* du champ électromagnétique quantifié puisque celles-ci influencent l'état du système à deux niveaux considéré [130, 131]. Ces fluctuations, qui sont aléatoires et caractérisées par des temps de corrélation très courts, entraînent non seulement l'amortissement de $\langle S_\pm(t) \rangle$ mais aussi la fluctuation du moment dipolaire instantané $S_\pm(t)$ autour de sa valeur moyenne. *La lumière émise est donc composée du rayonnement du moment dipolaire moyen induit par le mouvement moyen du dipôle, et du rayonnement induit par les fluctuations autour de ce mouvement moyen.*

Concernant les effets engendrés par le système à deux niveaux sur l'onde électromagnétique incidente tels que l'absorption ou l'amplification (i.e. émission stimulée), le mouvement moyen de $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ qui possède une phase bien définie par rapport à l'onde incidente joue un rôle essentiel. En revanche, les fluctuations de $S_{\pm}(t)$, dont la phase est aléatoire, induisent du bruit sur le signal et peuvent être négligées en première approximation.

3.1.1.c Contributions cohérente et incohérente à l'émission résonnante

Par souci de clarté et afin de ne pas alourdir la démonstration, nous ne tenons plus compte de la dépendance temporelle dans la suite des équations. En notant $S_{\pm} = \langle S_{\pm} \rangle + \delta S_{\pm}$, où δS_{\pm} représente les fluctuations de S_{\pm} , nous déduisons une expression simplifiée de l'équation 3.10. En effet :

$$S_+ S_- = (\langle S_+ \rangle + \delta S_+) (\langle S_- \rangle + \delta S_-) \quad (3.13)$$

$$= \langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle + \delta S_+ \delta S_- + \langle S_+ \rangle \delta S_- + \delta S_+ \langle S_- \rangle \quad (3.14)$$

où $\langle \delta S_{\pm} \rangle = 0$ par définition des fluctuations. La moyenne de l'équation précédente donne :

$$\langle S_+ S_- \rangle = \langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle + \langle \delta S_+ \delta S_- \rangle \quad (3.15)$$

et l'intensité s'écrit alors :

$$I \propto \underbrace{\langle S_+ \rangle_{st} \langle S_- \rangle_{st}}_{I_{\text{cohérent}}} + \underbrace{\langle \delta S_+ \delta S_- \rangle_{st}}_{I_{\text{incohérent}}} \quad (3.16)$$

Dans cette nouvelle expression de l'intensité :

- $I_{\text{cohérent}}$ correspond au rayonnement du moment dipolaire moyen, de phase bien définie par rapport à celle du laser d'excitation comme dans le cas du rayonnement forcé d'un dipôle classique. Cette composante de l'émission conserve donc la cohérence du laser et l'émission présente une largeur spectrale $\hbar\gamma$ très fine centrée en ω_L . Son temps de cohérence est le temps cohérence $T_L = \gamma^{-1}$ du laser. Il s'agit de la diffusion Rayleigh résonnante.
- $I_{\text{incohérent}}$ correspond au rayonnement dû aux fluctuations aléatoires du moment dipolaire, de phase aléatoire par rapport à celle du laser d'excitation. Cette composante de l'émission perd totalement la cohérence du laser. Son temps de cohérence est imposé par le couplage du système à deux niveaux (l'état excité $|e\rangle$) avec le vide fluctuant, avec un temps caractéristique de l'ordre de T_1 . Il s'agit de la photoluminescence résonnante dont le spectre est calculé ci-après.

Nous remarquons que l'intensité d'émission donnée par équation (3.16) est intégrée spectralement sur toute la fenêtre spectrale d'émission. Elle dépend en

général du désaccord spectrale $\delta = \omega_L - \omega_0$. Nous définissons aussi la densité spectrale $\mathcal{I}(\delta, \omega)$ dont la relation avec l'intensité intégrée spectralement $I(\delta)$ est donnée par :

$$I(\delta) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{I}(\delta, \omega) d\omega \quad (3.17)$$

Du point de vue expérimental, la densité spectrale à la résonance $\mathcal{I}(\delta = 0, \omega)$ est donnée par le spectre de PL résonnante². De plus, si la fenêtre spectrale du détecteur est plus grande que celle d'émission résonnante, l'intensité totale $I(\delta)$ est donné par le spectre de PLE résonnante³.

Par la suite, nous établissons les expressions du spectre d'émission du système à la résonance, c'est-à-dire la distribution spectrale des parties cohérente et incohérente de l'émission, ainsi que la statistique des photons émis par un système à deux niveaux sous excitation résonnante.

3.1.2 Equations de Bloch optiques

Nous utilisons le formalisme de matrice de densité pour décrire le système à deux niveaux. La matrice densité réduite ρ dans la base $|e\rangle$ et $|g\rangle$ s'écrit :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix} \quad (3.18)$$

Pour développer ce calcul dans le référentiel tournant à ω_L , ρ est préférentiellement écrit sous une nouvelle forme, telle que :

$$\rho = \begin{pmatrix} \hat{\rho}_{ee} & \hat{\rho}_{eg} e^{-i\omega_L t} \\ \hat{\rho}_{ge} e^{i\omega_L t} & \hat{\rho}_{gg} \end{pmatrix} \quad (3.19)$$

avec

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{gg} &= 1 - \hat{\rho}_{ee} \\ \hat{\rho}_{ge} &= \hat{\rho}_{eg}^* \end{cases} \quad (3.20)$$

D'après les équations 3.2 et 3.4, nous déduisons que :

$$\begin{cases} \langle S_+ \rangle &= Tr(\rho S_+) = \hat{\rho}_{ge} \\ \langle S_- \rangle &= Tr(\rho S_-) = \hat{\rho}_{eg} \\ \langle S_z \rangle &= Tr(\rho S_z) = \hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg} \end{cases} \quad (3.21)$$

Ces relations confirment que les éléments diagonaux de ρ décrivent la population tandis que les éléments non-diagonaux de ρ décrivent la polarisation, donc la cohérence, comme annoncé dans la section 1.3.2.a du chapitre 1 (page 38). Dans le

2. Intensité en fonction d'énergie de détection sous excitation résonnante

3. Intensité en fonction d'énergie d'excitation au voisinage de l'énergie de la résonance

formalisme de la matrice de densité, l'évolution d'un système à deux niveaux est gouvernée par les équations de Bloch optiques. Les équations de Bloch optique pour le Hamiltonien (3.1) sont données par [132] :

$$\begin{aligned}
\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} &= \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{eg} - \hat{\rho}_{ge}) - \Gamma\hat{\rho}_{ee} \\
\frac{d\hat{\rho}_{gg}}{dt} &= -\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} \\
\frac{d\hat{\rho}_{eg}}{dt} &= i\delta\hat{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg}) - \frac{\Gamma}{2}\hat{\rho}_{eg} \\
\frac{d\hat{\rho}_{ge}}{dt} &= -i\delta\hat{\rho}_{ge} - \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg}) - \frac{\Gamma}{2}\hat{\rho}_{ge}
\end{aligned} \tag{3.22}$$

La fréquence de Rabi Ω est défini par $\Omega = 2g\sqrt{\langle n \rangle}$ où $\langle n \rangle$ est le nombre moyen de photons qui est proportionnel à la puissance du laser. Nous déduisons que $\Omega^2 \propto p_{laser}$.

En appliquant les équations (3.21) à l'ensemble des équations (3.22), les équations de Bloch optiques s'écrivent sous la forme suivante :

$$\begin{aligned}
\frac{d\langle S_z \rangle}{dt} &= i\Omega(\langle S_- \rangle - \langle S_+ \rangle) - \Gamma(\langle S_z \rangle + 1) \\
\frac{d\langle S_{\pm} \rangle}{dt} &= -\left(\pm i\delta + \frac{\Gamma}{2}\right)\langle S_{\pm} \rangle \mp \frac{i\Omega}{2}\langle S_z \rangle
\end{aligned} \tag{3.23}$$

Les solutions de ces équations en régime stationnaire s'obtiennent directement et sont :

$$\begin{aligned}
\langle S_z \rangle_{st} &= -\frac{\Gamma^2 + 4\delta^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2} \\
\langle S_{\pm} \rangle_{st} &= -\frac{\Omega(2\delta \mp i\Gamma)}{\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2}
\end{aligned} \tag{3.24}$$

Ces solutions décrivent la population (i.e. S_z) et le moment dipolaire (i.e. S_{\pm}) du système à deux niveaux en régime stationnaire. Dans la suite de ce chapitre, nous utilisons ces résultats pour calculer les différentes composantes de l'intensité d'émission résonnante.

3.1.3 Intensité intégrée spectralement de l'émission résonnante

Sans résoudre les équations de Bloch optiques⁴, nous pouvons déduire les expressions de I , $I_{\text{cohérent}}$ et $I_{\text{incohérent}}$ à l'aide des solutions stationnaires (3.24) :

4. La solution exacte des équations de Bloch optiques est détaillée dans l'annexe A1

– Intensité d'émission totale :

$$I \propto \langle S_+ S_- \rangle_{st} = \langle |e\rangle \langle e| \rangle_{st} \quad (3.25)$$

$$\Rightarrow I \propto \frac{1 + \langle S_z \rangle_{st}}{2} \quad (3.26)$$

$$\Rightarrow I \propto \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2} \quad (3.27)$$

– Intensité d'émission cohérente :

$$I_{\text{cohérent}} \propto \langle S_+ \rangle_{st} \langle S_- \rangle_{st} \quad (3.28)$$

$$\Rightarrow I_{\text{cohérent}} \propto \frac{\Omega^2 (\Gamma^2 + 4\delta^2)}{(\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2)^2} \quad (3.29)$$

– Intensité d'émission incohérente :

$$I_{\text{incohérent}} = I - I_{\text{cohérent}} \quad (3.30)$$

$$\Rightarrow I_{\text{incohérent}} \propto \frac{2\Omega^4}{(\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2)^2} \quad (3.31)$$

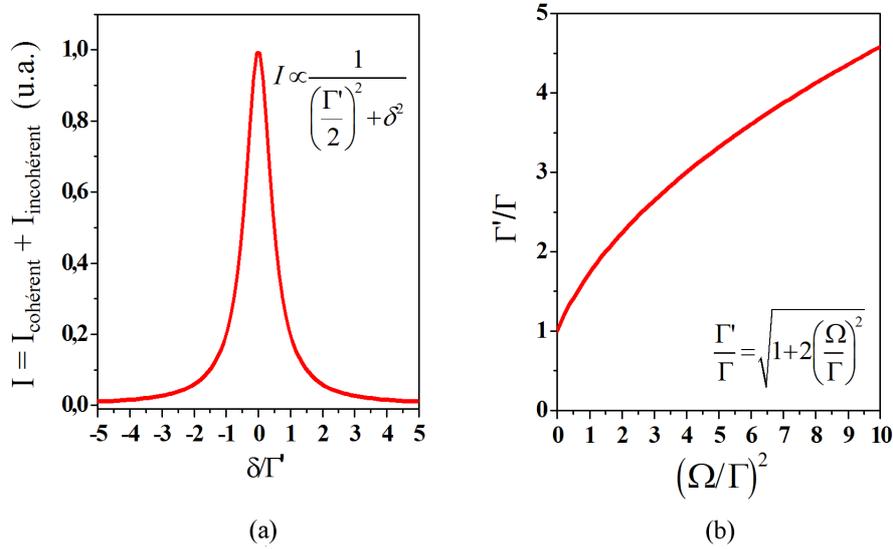


FIGURE 3.1 – (a) L'intensité totale en fonction du désaccord de fréquence δ est une Lorentzienne de largeur Γ' . (b) Largeur Γ' en fonction de la puissance d'excitation.

D'après l'équation (3.27), le spectre $I(\delta)$ d'intensité totale en fonction du désaccord de fréquence δ est une Lorentzienne de largeur $\hbar\Gamma'$ où $\Gamma' = \hbar\Gamma\sqrt{1 + 2\Omega^2/\Gamma^2}$. La figure 3.1(a) présente un tel spectre avec valeur de Γ' donnée tandis que la

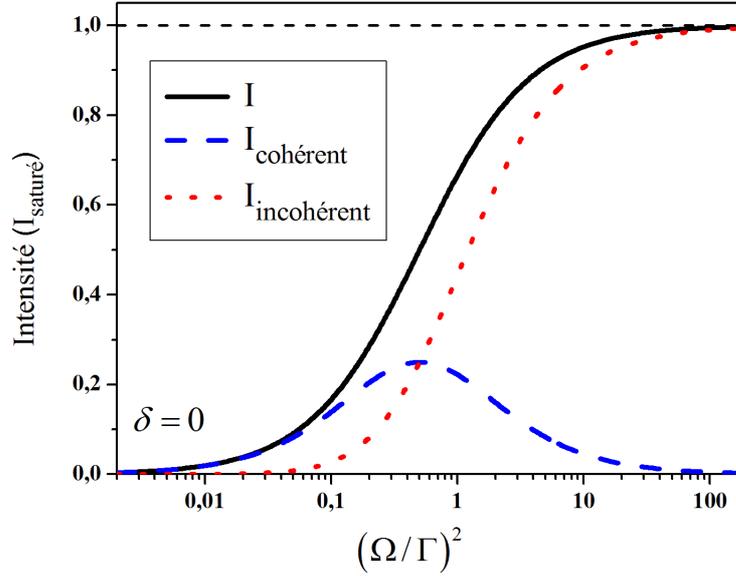


FIGURE 3.2 – Dépendance en puissance de l'intensité totale ainsi que des composantes cohérente et incohérente de l'émission résonnante.

figure 3.1(b) présente la dépendance en Ω de Γ' . Nous déduisons également la dépendance en puissance d'excitation ($p_{laser} \propto \Omega^2$) de l'intensité totale : elle est linéaire à faible puissance ($\Omega \ll \Gamma$) et elle sature à forte puissance ($\Omega \gg \Gamma$) (figure 3.2). Deux cas limites sont donc à distinguer :

1. **Limite à faible puissance** ($\Omega \ll \Gamma$) : $I_{\text{cohérent}}$ varie en Ω^2 , tandis que $I_{\text{incohérent}}$ varie en Ω^4 . Alors $I_{\text{cohérent}} \gg I_{\text{incohérent}}$. La domination de la composante cohérente peut être expliquée qualitativement de la façon suivante : à faible puissance d'excitation, le système à deux niveaux est très peu peuplé et il se trouve quasiment tout le temps dans l'état fondamental. Alors la décohérence dû au couplage entre l'état excité et le vide fluctuant est très faible, ce qui entraîne une grande cohérence de l'émission. L'émission résonnante correspond donc majoritairement à la diffusion Rayleigh élastique.
2. **Limite à forte puissance** ($\Omega \gg \Gamma$) : contrairement au cas précédent, le signal est dominé par la composante incohérente de l'émission résonnante. D'après la figure , $I_{\text{cohérent}}$ tend vers 0 tandis que $I_{\text{incohérent}}$ augmente jusqu'à saturation. A très forte puissance incidente, les termes associés aux populations de la boîte quantique s'égalisent (équations (3.24) $\Rightarrow \langle S_z \rangle_{st} = 0$) et l'exciton se trouve alors pendant la moitié de sa durée de vie dans l'état $|e\rangle$. Ainsi, il ne peut émettre plus de $\frac{1}{2T_1}$ photons par seconde, ce qui provoque la saturation de l'émission. Par ailleurs, le moment dipolaire moyen s'annule

(équations (3.24) $\Rightarrow \langle S_{\pm} \rangle_{st} = 0$) et le signal ne présente plus de composante cohérente. La domination de la composante incohérente peut être aussi expliqué d'une manière qualitative : à forte puissance d'excitation, le système à deux niveaux est très peuplé ; par conséquent, la fluctuation du vide influence fortement l'émission via son couplage avec l'état excité. L'émission résonnante correspond donc dans ce régime à la photoluminescence résonnante.

3.1.4 Fonction de corrélation de premier ordre et spectre de l'émission résonnante

La fonction de corrélation de premier ordre non-normalisée est définie par [112] :

$$\begin{aligned} g^{(1)}(\tau) &= \langle E^-(r, t) E^+(r, t + \tau) \rangle \\ &\propto \langle \sigma_+(t - r/c) \sigma_-(t + \tau - r/c) \rangle \\ &\propto e^{i\omega_L t} \langle S_+(t - r/c) S_-(t + \tau - r/c) \rangle \end{aligned} \quad (3.32)$$

Lorsque le temps de propagation r/c est négligé, la fonction de corrélation du premier ordre est alors donnée en régime stationnaire par :

$$g^{(1)}(\tau) \propto e^{-i\omega_L \tau} \langle S_+(t) S_-(t + \tau) \rangle_{st} \quad (3.33)$$

D'autre part, à une puissance d'excitation $p_{laser} \propto \Omega^2$ et un désaccord δ donnés, la densité spectrale du rayonnement $\mathcal{I}(\delta, \omega)$ que nous avons défini par l'équation (3.17) peut être calculée par la transformée de Fourier de la fonction $g^{(1)}(\tau)$ [112] :

$$\begin{aligned} \mathcal{I}(\delta, \omega) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} g^{(1)}(\tau) \\ &\propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \langle S_+(t + \tau) S_-(t) \rangle_{st} \end{aligned} \quad (3.34)$$

Avec les mêmes arguments que ceux utilisés dans la partie 3.1.2b, le spectre $\mathcal{I}(\delta, \omega)$ consiste en deux composantes cohérente et incohérente, telles que :

$$\mathcal{I}(\delta, \omega)_{\text{cohérent}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \langle S_+(t + \tau) \rangle_{st} \langle S_-(t) \rangle_{st} \quad (3.35)$$

$$\propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \langle S_+(t) \rangle_{st} \langle S_-(t) \rangle_{st} \quad (3.36)$$

$$\mathcal{I}(\delta, \omega)_{\text{incohérent}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{i(\omega_L - \omega)\tau} \langle \delta S_+(t + \tau) \delta S_-(t) \rangle_{st} \quad (3.37)$$

L'intégration de l'équation (3.36) donne :

$$\boxed{\mathcal{I}(\delta, \omega)_{\text{cohérent}} \propto \delta(\omega - \omega_L)} \quad (3.38)$$

Le spectre de la composante cohérente de l'émission est donc effectivement le spectre d'une lumière monochromatique. Le dipôle moyen oscille à la fréquence ω_L dans le cas d'une excitation laser (régime forcé), ce qui entraîne l'émission d'un rayonnement de même fréquence par ce même dipôle. Le temps de cohérence de cette émission est le temps du cohérence T_L du laser comme annoncé lors de la discussion de la page 79. Cependant, nous verrons que le spectre de la composante incohérente, soit la densité spectrale d'émission du rayonnement des fluctuations du dipôle, n'est pas monochromatique comme annoncé aussi page 79. Nous ne nous intéressons dans la suite qu'aux résultats correspondant à une excitation strictement résonnante ($\delta = 0$). La résolution analytique des équations de Bloch optiques est nécessaire pour accéder au spectre complet de l'émission résonnante du système à deux niveaux. Les étapes détaillées de ces calculs sont présentés dans l'annexe A₂⁵. D'après ces calculs, la fonction $g^{(1)}(\tau)$ dans le cas d'excitation résonnante a pour expression :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{+i\omega_0 t} \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \left\{ \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} + \frac{e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}}}{2} + \frac{e^{-\frac{3\Gamma\tau}{4}}}{2} (\alpha \cos \mu\tau + \beta \sin \mu\tau) \right\} \quad (3.39)$$

ou bien

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0 t} \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \left\{ \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} + \frac{e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}}}{2} + \frac{e^{-\frac{3\Gamma\tau}{4}}}{4} [e^{-i\mu\tau}(\alpha + i\beta) + e^{i\mu\tau}(\alpha - i\beta)] \right\} \quad (3.40)$$

avec

$$\begin{cases} \mu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{\Gamma^2}{16}} \\ \alpha &= 1 - \frac{2\Gamma^2}{2\Omega^2 + \Gamma^2} \\ \beta &= \frac{\Gamma}{4\mu} \frac{10\Omega^2 - \Gamma^2}{2\Omega^2 + \Gamma^2} \end{cases} \quad (3.41)$$

D'après (3.34), le spectre $\mathcal{I}(\delta, \omega)$ correspond à la transformée de Fourier de $g^{(1)}(\tau)$. Dans le cas $\delta = 0$, nous allons le noter $\mathcal{I}(\omega)$ au lieu de $\mathcal{I}(\delta = 0, \omega)$ pour alléger les notations. Le premier terme de (3.40) donne la partie cohérente :

$$\mathcal{I}(\omega)_{\text{cohérent}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i(\omega_0 - \omega)\tau} \left(\frac{\Omega\Gamma}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \right)^2 \quad (3.42)$$

$$\Rightarrow \mathcal{I}(\omega)_{\text{cohérent}} \propto \left(\frac{\Omega\Gamma}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \right)^2 \delta(\omega - \omega_0) \quad (3.43)$$

5. En résumé, il faut résoudre analytiquement $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ et $\langle S_{\pm}(z) \rangle$ puis déduire le terme de corrélation $\langle S_+(t)S_-(t + \tau) \rangle$ grâce au *théorème de régression quantique*.

tandis que les trois derniers termes de (3.40) correspondent à l'émission incohérente (photoluminescence résonnante) :

$$\mathcal{I}(\omega)_{\text{incohérent}} \propto \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i(\omega_0-\omega)\tau} \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \left\{ \frac{e^{-\frac{\Gamma}{2}\tau}}{2} + \frac{e^{-\frac{3\Gamma}{4}\tau}}{4} [e^{-i\mu\tau}(\alpha + i\beta) + e^{i\mu\tau}(\alpha - i\beta)] \right\} \quad (3.44)$$

$$\Rightarrow \mathcal{I}(\omega)_{\text{incohérent}} \propto \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \left[\frac{\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2} + \frac{\frac{3\Gamma}{4}\alpha + (\omega + \mu - \omega_0)\beta}{(\omega + \mu - \omega_0)^2 + (3\Gamma/4)^2} + \frac{\frac{3\Gamma}{4}\alpha - (\omega - \mu - \omega_0)\beta}{(\omega - \mu - \omega_0)^2 + (3\Gamma/4)^2} \right] \quad (3.45)$$

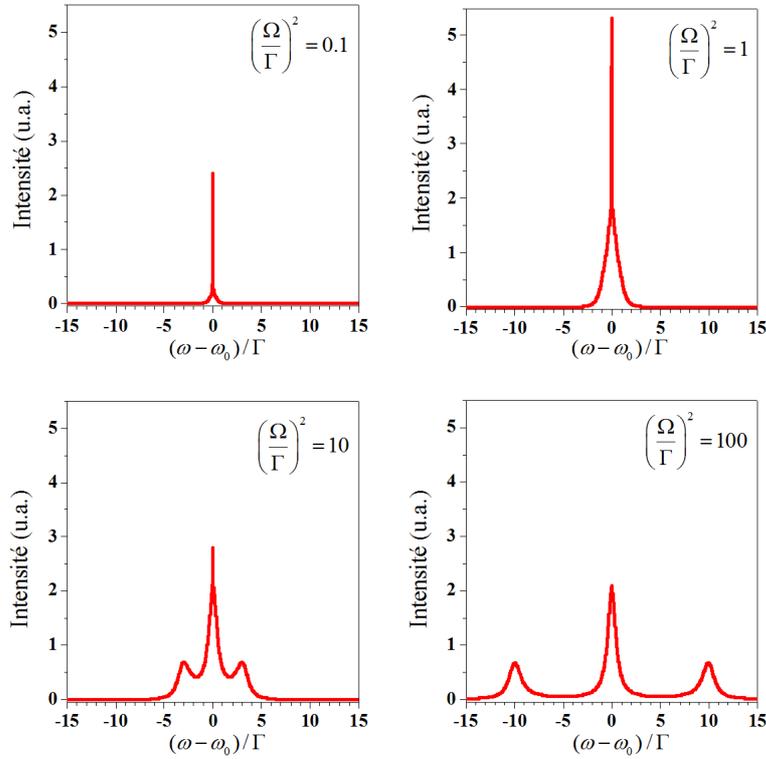


FIGURE 3.3 – Spectre d'émission résonnante pour différentes puissances d'excitation. La largeur du laser est prise égale à $\gamma = 0.01 \Gamma$.

La figure 3.3 présente le spectre théorique d'émission résonnante à différente puissance d'excitation. Les différentes allures de spectre sont interprétées de la façon suivante :

- **Limite à très faible puissance** ($\Omega \ll \ll \Gamma$) : Le spectre d'émission présente une seule raie identique à la raie laser qui n'est autre qu'une fonction de Dirac dans centrée en $\omega_L = \omega_0$ dans le cas d'une excitation résonnante

parfaitement monochromatique. L'émission résonnante est alors complètement dominée par la composante cohérente. Quantitativement, lorsque $\Omega \lll \Gamma$, nous avons :

$$(3.41) \quad \Rightarrow \quad \begin{cases} \mu & \approx \frac{i\Gamma}{4} \\ \alpha & \approx -1 \\ \beta & \approx -i \end{cases} \quad (3.46)$$

En remplaçant ces valeurs dans l'équation (3.40), les trois termes de la composante incohérente se simplifient et il reste uniquement la partie cohérente.

- **Limite à faible puissance** ($\Omega \ll \Gamma$) : Il s'agit du cas $\left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2 = 0.1$ de la figure 3.3. L'émission résonnante est toujours dominée par la composante cohérente mais la composante incohérente n'est plus négligeable. Le spectre d'émission présente un pic de Dirac et une petite lorentzienne centrée en ω_0 de largeur $\hbar\Gamma$. Quantitativement, un développement limité d'ordre 2 en $\frac{\Omega}{\Gamma}$ de l'équation (3.40) donne :

$$g^{(1)}(\tau) \approx e^{-i\omega_0\tau} \left(\frac{\Omega\Gamma}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \right)^2 \left(1 + \frac{2\Omega^2}{\Gamma^2} e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}} \right) \quad (3.47)$$

où le terme de la composante incohérente est effectivement une exponentielle décroissante de temps caractéristique $2T_1$, ce qui correspond à un spectre d'émission incohérente lorentzienne de largeur $\hbar\Gamma$.

- **Phase de transition des puissance moyennement fort** ($\Omega \sim \Gamma$) : Il s'agit du cas $\left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2 = 1$ et $\left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2 = 10$ de la figure 3.3. L'émission incohérente prend de plus en plus d'importance et finit par dominer le spectre d'émission résonnante. Une fois que la composante incohérente domine, nous commençons à voir deux raies secondaires sur les épaules de la raie centrale centrée en ω_0 . Ces trois raies de la composante incohérente sont appelées le *triplet de Mollow* [111].
- **Limite à très forte puissance** ($\Omega \gg \gg \Gamma$) : Il s'agit du cas $\left(\frac{\Omega}{\Gamma}\right)^2 = 100$ de la figure 3.3. La composante cohérente est maintenant négligeable et l'émission résonnante est complètement dominée par la composante incohérente. Le spectre d'émission présente seulement le *triplet de Mollow* dont les deux raies secondaires sont séparées de la raie centrale par la fréquence de Rabi Ω . Quantitativement, lorsque $\Omega \lll \Gamma$, nous avons :

$$(3.41) \quad \Rightarrow \quad \begin{cases} \mu & \approx \Omega \\ \alpha & \approx 1 \\ \beta & \approx 0 \end{cases} \quad (3.48)$$

En comparant (3.43) et (3.45), la partie cohérente devient en effet négligeable et il ne reste que la partie incohérente (comme prévu dans la partie 3.1.2b). Le spectre présente trois raies centrées en ω_0 et $\omega_0 \pm \Omega$ ⁶. La largeur de la raie centrale vaut $\hbar\Gamma$ et celle des raies secondaires vaut $\frac{3}{2}\hbar\Gamma$. L'intensité de la raie centrale est trois fois plus grande que les deux autres.

3.1.5 Fonction de corrélation de deuxième ordre et le dégroupement de photons à l'excitation résonnante

3.1.5.a Définition de la fonction de corrélation de deuxième ordre

La fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$ est définie classiquement par :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (3.49)$$

où $I(t)$ est l'intensité du champs électromagnétique détecté à l'instant t .

En physique quantique, la définition (3.49) devient [129] :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^-(r,t)E^-(r,t+\tau)E^+(r,t)E^+(r,t+\tau) \rangle_{st}}{\langle E^-(r,t)E^+(r,t) \rangle_{st}^2} \quad (3.50)$$

Dans le cas d'excitation résonnante, d'après l'équation (3.9) et en négligeant le temps de propagation $\frac{r}{c}$, nous déduisons que :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle \sigma_+(t)\sigma_+(t+\tau)\sigma_-(t+\tau)\sigma_-(t) \rangle_{st}}{\langle \sigma_+(t)\sigma_-(t) \rangle_{st}^2} \\ &= \frac{\langle S_+(t)S_+(t+\tau)S_-(t+\tau)S_-(t) \rangle_{st}}{\langle S_+(t)S_-(t) \rangle_{st}^2} \end{aligned} \quad (3.51)$$

A l'aide du *théorème de régression quantique*⁷, nous pouvons démontrer que [133] :

$$\boxed{g^{(2)}(\tau) = \frac{\rho_{ee}(\tau)}{\rho_{ee}(\infty)} \Big|_{\rho_{gg}(0)=1}} \quad (3.52)$$

C'est à dire que la fonction $g^{(2)}(\tau)$ est proportionnelle à la population de l'état excité à l'instant τ sachant que le système à deux niveau est à l'état fondamental

6. Le spectre d'émission résonnante à très forte puissance d'excitation peut être déduit facilement par l'image de l'atome habillé (voir annexe A4)

7. L'énoncé de ce théorème est donné dans l'annexe A.2

à l'instant zéro. Nous pouvons interpréter ce résultat d'une manière qualitative : du point de vue expérimental, la fonction $g^{(2)}(\tau)$ est la probabilité de détecter un photon à l'instant τ sachant qu'un autre photon est certainement détecté à l'instant zéro [134]. Or la probabilité de détecter un photon n'est rien d'autre que la probabilité d'émission spontanée qui est proportionnelle à la population de l'état excité $\rho_{ee}(t)$. En outre, la condition qu'un photon soit certainement détecté à l'instant zéro est équivalente à la condition initiale que le système soit à l'état fondamental à l'instant zéro

3.1.5.b Expression explicite de $g_2(\tau)$

La résolution des équations de Bloch optiques (voir l'annexe A.1) nous permettent d'obtenir $\rho_{ee}(\tau)$ à la condition initiale $\rho_{gg}(0) = 1$. Par conséquence, nous déduisons l'expression explicite de $g_2(\tau)$ à la résonance, telle que :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \left(\cos \mu\tau + \frac{3\Gamma}{4\mu} \sin \mu\tau \right) e^{-\frac{3\Gamma}{4}\tau} \quad (3.53)$$

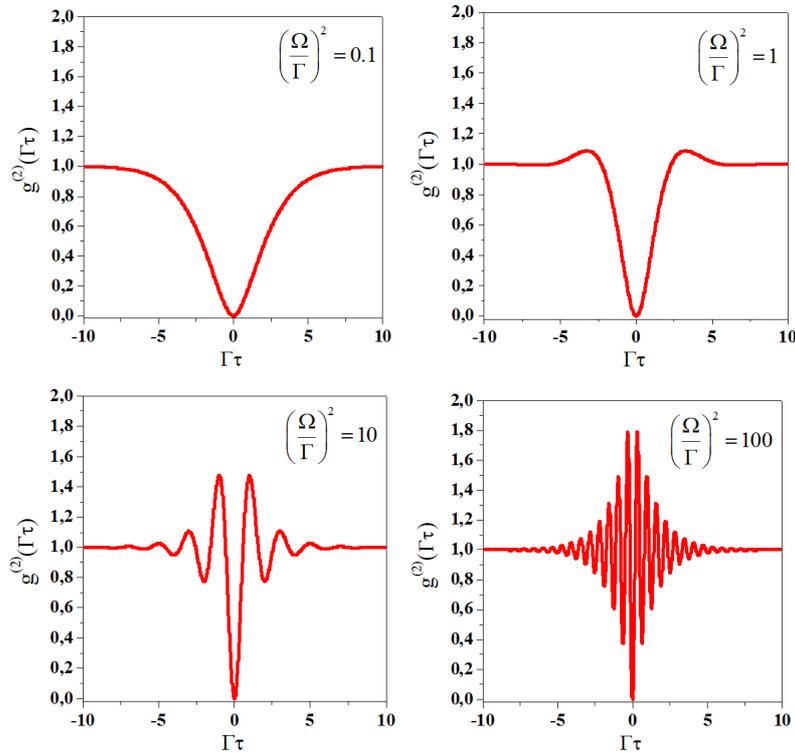


FIGURE 3.4 – Fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}$ à la résonance pour différentes puissances d'excitation.

D'après l'expression (3.53), $g^{(2)}(\tau = 0) = 0$, ce qui indique qu'une boîte quantique idéale sous excitation résonnante est une source de photons uniques. La figure 3.4 présente la fonction $g^{(2)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation : un seul creux d'*antibunching* à $\tau = 0$ apparaît à faible puissance d'excitation tandis que des oscillations de période de l'ordre de Ω^{-1} sont présentées à forte puissance d'excitation. Nous remarquons que la nature de source de photons uniques est toujours valable quelle que soit la puissance d'excitation. En particulier, dans la limite à très faible puissance d'excitation ($\Omega \ll \Gamma$), tandis que l'émission résonnante est une émission cohérente, la statistique des photons émis est donné par $g^{(2)}(\tau) = (1 - e^{-\Gamma\tau/2})^2$ qui vérifie effectivement $g^{(2)}(0) = 0$. A priori, cela apparaît paradoxal car nous avons une émission de photons uniques mais son spectre est celui d'un laser monochromatique. Ce paradoxe peut être facilement expliqué par le fait que les fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ ne sont pas du tout dans un traitement quantique [112]. Plus précisément, dans la limite de très faible puissance d'excitation, la fonction $g^{(1)}(\tau)$ est caractérisée par le rayonnement dipolaire en régime forcé, donc elle conserve les propriétés classique du champs électrique incident ; tandis que la fonction $g^{(2)}(\tau)$ est caractérisée par la population de l'état excité qui est une propriété quantique du couplage "lumière- matière". En conclusion, un système à deux niveaux (une boîte quantique idéale) sous excitation résonnante à très faible puissance est une source de photons non seulement uniques mais aussi cohérents. Ces deux propriétés mettent en évidence à la fois les propriétés quantiques et classiques de l'émission résonnante [135].

3.1.6 Résultats en dehors de la limite radiative

Jusqu'à présent, nous avons établi les propriétés principales de l'émission d'un système à deux niveaux (boîte quantique idéale) dans le cas de la limite radiative sous excitation résonnante par un laser monochromatique. Cette section va généraliser ces résultats dans le cas où il existe des processus non radiatifs associés aux interactions de la boîte avec son environnement. De plus, un laser monochromatique idéal n'existe pas et il faut prendre en compte la largeur $\hbar\gamma$ du laser d'excitation correspondant à un temps de cohérence T_L non infini. Néanmoins, tous les résultats établis précédemment restent a priori valables qualitativement. La seule différence qui est d'ordre mathématique apparaît du fait de la modification des équations de Bloch optiques en introduisant le temps de déphasage T_2 et la prise en compte du profil spectral du laser d'excitation . En effet, en tenant compte désormais des temps de vie T_1 et de cohérence T_2 tel que $T_2 < 2T_1 \ll T_L$, les deux formes des équations de Bloch optiques (3.22) et (3.23) deviennent :

$$\begin{aligned}
\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} &= \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{eg} - \hat{\rho}_{ge}) - \frac{1}{T_1}\hat{\rho}_{ee} \\
\frac{d\hat{\rho}_{gg}}{dt} &= -\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} \\
\frac{d\hat{\rho}_{eg}}{dt} &= i(\omega_L - \omega_0)\hat{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg}) - \frac{1}{T_2}\hat{\rho}_{eg} \\
\frac{d\hat{\rho}_{ge}}{dt} &= -i(\omega_L - \omega_0)\hat{\rho}_{ge} - \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg}) - \frac{1}{T_2}\hat{\rho}_{ge}
\end{aligned} \tag{3.54}$$

et

$$\begin{aligned}
\frac{d\langle S_z \rangle}{dt} &= i\Omega(\langle S_- \rangle - \langle S_+ \rangle) - \frac{1}{T_1}(\langle S_z \rangle + 1) \\
\frac{d\langle S_{\pm} \rangle}{dt} &= -\left(\pm i(\omega_L - \omega_0) + \frac{1}{T_2}\right)\langle S_{\pm} \rangle \mp \frac{i\Omega}{2}\langle S_z \rangle
\end{aligned} \tag{3.55}$$

Les précédents raisonnements et calculs conduisent aux expressions de l'intensité de fluorescence et des fonctions de corrélation $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ suivantes⁸ :

$$I \propto \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2 + T_2^2 \delta^2)} \tag{3.56}$$

$$I_{\text{cohérent}} \propto \frac{\Omega^2 T_2^2 (1 + T_2^2 \delta^2)}{4(1 + \Omega^2 T_1 T_2 + T_2^2 \delta^2)^2} \tag{3.57}$$

et

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0 \tau} \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left\{ \frac{T_2}{2T_1} e^{-\frac{\tau}{T_1}} + \frac{e^{-\frac{\tau}{T_2}}}{2} + \frac{e^{-\eta\tau}}{2} (\tilde{\alpha} \cos \nu\tau + \tilde{\beta} \sin \nu\tau) \right\} \tag{3.58}$$

$$\mathcal{I}_{\text{cohérent}}(\omega) \propto \frac{\Omega^2 T_2^2}{4\pi(1 + \Omega^2 T_1^2 T_2^2)} \frac{\frac{1}{T_L}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{T_L^2}} \tag{3.59}$$

$$\mathcal{I}_{\text{incohérent}}(\omega) \propto \frac{\Omega^2 T_2 T_1}{8\pi(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left[\frac{\frac{2}{T_2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{T_2^2}} + \frac{\eta\tilde{\alpha} + (\omega + \nu - \omega_0)\tilde{\beta}}{(\omega + \nu - \omega_0)^2 + \eta^2} + \frac{\eta\tilde{\alpha} - (\omega - \nu - \omega_0)\tilde{\beta}}{(\omega - \nu - \omega_0)^2 + \eta^2} \right] \tag{3.60}$$

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \left(\cos \nu\tau + \frac{\eta}{\nu} \sin \nu\tau \right) e^{-\eta\tau} \tag{3.61}$$

8. Les calculs sont bien détaillés dans l'annexe A

où

$$\begin{cases} \eta &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \\ \nu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)^2} \\ \tilde{\alpha} &= 1 - \frac{T_2}{T_1(1+\Omega^2 T_1 T_2)} \\ \tilde{\beta} &= \frac{\Omega^2 T_1 (3T_2 - T_1) - \frac{(T_1 - T_2)^2}{T_1 T_2}}{2\nu T_1 (1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \end{cases} \quad (3.62)$$

De plus, d'après les équations (3.56) et (3.57), le rapport entre l'intensité de la composante cohérente et l'intensité totale de l'émission résonnante lorsque $\delta=0$ s'écrit comme :

$$\boxed{\frac{I_{\text{cohérent}}}{I} = \frac{T_2}{2T_1} \frac{1}{1 + \Omega^2 T_1 T_2}} \quad (3.63)$$

Les résultats hors de la limite radiative sont alors qualitativement identiques à ceux de la limite radiative. L'intensité totale en fonction du désaccord en fréquence (i.e. le spectre de PLE résonnante) présente toujours un profil lorentzien (cf la figure 3.1(a)) avec une largeur maintenant égale à $\frac{2\hbar}{T_2} \sqrt{1 + \Omega^2 T_1 T_2}$, et le phénomène d'*antibunching* apparaît sur la fonction $g^{(2)}(\tau)$ (cf la figure 3.4). La seule différence physique entre les deux cas apparaît dans le régime des très faibles puissances d'excitation où *l'émission résonnante présente toujours une composante incohérente non nulle*. En effet, à très faible puissance d'excitation, la cohérence de l'émission est beaucoup augmenté puisque le couplage entre l'état excité et le vide fluctuant ne perturbe pas un système à deux niveaux qui se trouve presque tout le temps à l'état fondamental. Cependant, le déphasage pur dû aux différents processus non-radiatifs perturbe le système quelque soit sa population, d'où une composante incohérente non nulle même à très faible puissance. Quantitativement, lorsque $\delta = 0$ et $\Omega^2 \ll \frac{1}{T_1 T_2}$, nous obtenons :

$$\begin{aligned} \frac{I_{\text{cohérent}}}{I} &= \frac{T_2}{2T_1} \leq 1 \\ \frac{I_{\text{incohérent}}}{I_{\text{cohérent}}} &= \frac{2T_1}{T_2} - 1 \geq 0 \end{aligned} \quad (3.64)$$

Nous déduisons également à partir de (3.58) que :

- **à très faible puissance d'excitation** : le spectre de l'émission résonnante présente une composante cohérente dont le profil est identique à celui du laser d'excitation, ainsi qu'une composante incohérente centrée en ω_0 de largeur $\frac{2\hbar}{T_2}$. Le rapport d'intensité entre ces deux composantes est donné par (3.64).
- **à très forte puissance d'excitation** : le spectre de l'émission résonnante est composé des trois raies du *triplet de Mollow* comme dans le cas de la limite radiative.

3.2 Résultats expérimentaux et discussions

Ce chapitre présente désormais les résultats expérimentaux obtenus sur une boîte quantique InAs/GaAs unique insérée dans une microcavité planaire. Il s'agit de la boîte quantique appelée QD1 de l'échantillon présenté dans le chapitre 2. Une comparaison avec les prévisions théoriques permet notamment de vérifier si une boîte quantique unique sous excitation résonnante est assimilable à un système à deux niveaux idéal, ce qui n'est pas le cas pour une excitation non résonnante du fait des interactions avec le continuum d'états de la couche de mouillage et de la barrière de GaAs.

3.2.1 Spectres de photoluminescence sous excitation quasi-résonnante et résonnante

Sur la figure 3.5 sont représentés les spectres de photoluminescence (PL) à 10K de la boîte quantique QD1 sous excitation quasi-résonnante ($\hbar\delta = -74\mu eV$, Fig.3.5(a)) et strictement résonnante ($\delta = 0$, Fig.3.5(b)). Les expériences sont réalisées en utilisant le montage d'excitation fibrée avec comme laser d'excitation la diode laser mono-mode. Le spectre de photoluminescence est enregistré sur une caméra CCD dont la résolution d'environ $20\mu eV$ ne permet d'accéder ni aux largeurs réelles du laser (quelques neV) et de la boîte quantique ($\sim 5\mu eV$), ni à la structure fine de l'exciton ($\sim 15\mu eV$).

- **Excitation quasi-résonnante** : l'énergie du laser est légèrement inférieure à celle de l'exciton (écart de $74\mu eV$). Bien que l'énergie d'excitation ne corresponde à aucun niveau d'absorption de la boîte quantique, celle-ci peut être excitée par absorption de phonons acoustiques. Le spectre de PL (figure 3.5(a)) présente deux pics qui correspondent à la diffusion parasite du laser et à la luminescence de la boîte quantique. La diffusion parasite du laser est très faible et du même ordre de grandeur de l'intensité de luminescence de la boîte. Celle-ci est en effet à comparer à la diffusion du laser dans un montage confocal qui peut être 5 à 6 ordres de grandeur plus élevée que l'intensité du signal de luminescence. Cette faible diffusion parasite du laser est la preuve que le montage d'excitation fibrée où le signal de détection est spatialement découplé du laser d'excitation est très bien optimisé.
- **Excitation strictement résonnante** : nous observons une exaltation d'un facteur 30 du signal par rapport à celui mesuré sous excitation quasi-résonnante ($I_{\text{résonnante}} \approx 30 I_{\text{quasi-résonnante}}$) et cette exaltation est une signature d'un effet de résonance. En effet, à la résonance, la section efficace d'absorption est optimale, ce qui induit une intensité de luminescence maximale (voir l'équation (3.56)). Notre montage permet donc de détecter l'émission résonnante d'une boîte quantique unique.

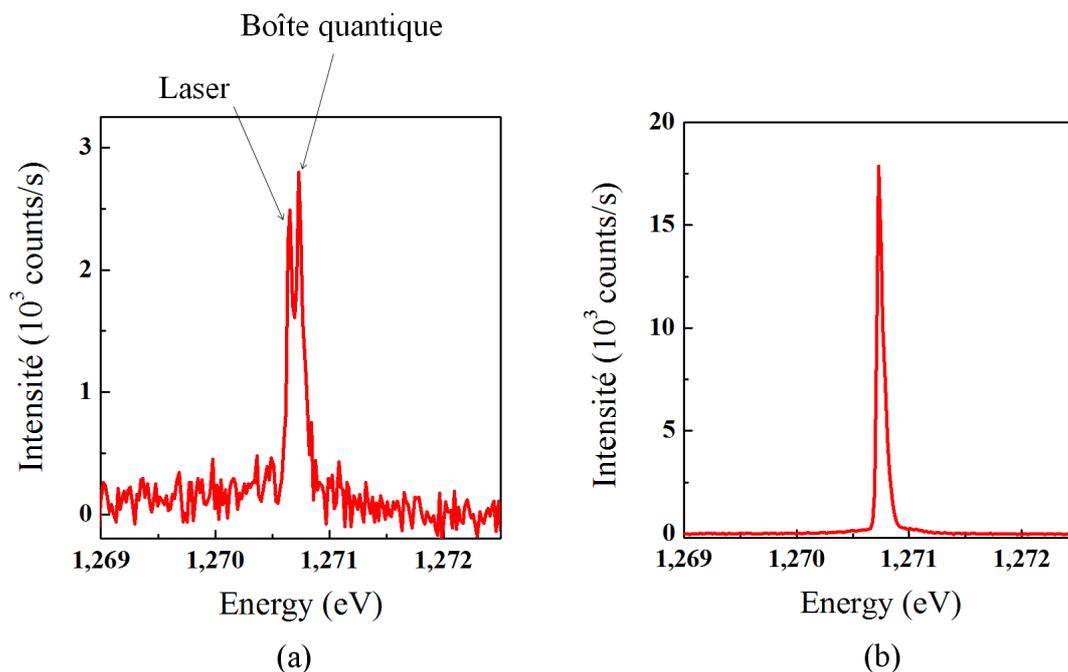


FIGURE 3.5 – Spectre de photoluminescence de QD1 sous excitation quasi-résonnante (a) et strictement résonnante (b).

3.2.2 Spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante

La diode laser est maintenant utilisée pour *sonder* l'absorption de QD1 en réalisant un spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante (PLE résonnante). Celui-ci repose sur la mesure de l'intensité de la photoluminescence en fonction du désaccord $\delta = \omega_L - \omega_0$ entre le laser et la transition fondamentale de QD1. Cette intensité est de plus intégrée spectralement dans une fenêtre de détection de l'ordre de $200 \mu\text{eV}$ qui est bien plus grande que la largeur spectrale de l'émission de QD1, nous assurant ainsi de détecter l'émission totale de QD1.

La figure 3.6(a) représente la PLE résonnante de QD1 sous excitation résonnante à une puissance de $4 \mu\text{W}$ à 10K. Un analyseur est placé sur la voie de détection en configuration croisée par rapport à la polarisation du laser. Nous observons un doublet de raies assez équilibrées en intensité, de largeurs $3.4 \mu\text{eV}$ et $3.9 \mu\text{eV}$, séparées de $9.3 \mu\text{eV}$. Il s'agit de la structure fine de la transition excitonique qui est associée à une levée de dégénérescence des deux polarisations croisées X et Y. Or la face clivée de l'échantillon impose au laser qui se propage suivant l'axe [110] (incidence perpendiculaire à la face clivée, figure 3.6(b)) une polarisation linéaire suivant l'axe $[1\bar{1}0]$. Par conséquent, nous en déduisons que les axes X et Y sont inclinés d'un angle de l'ordre de 45° par rapport aux axes

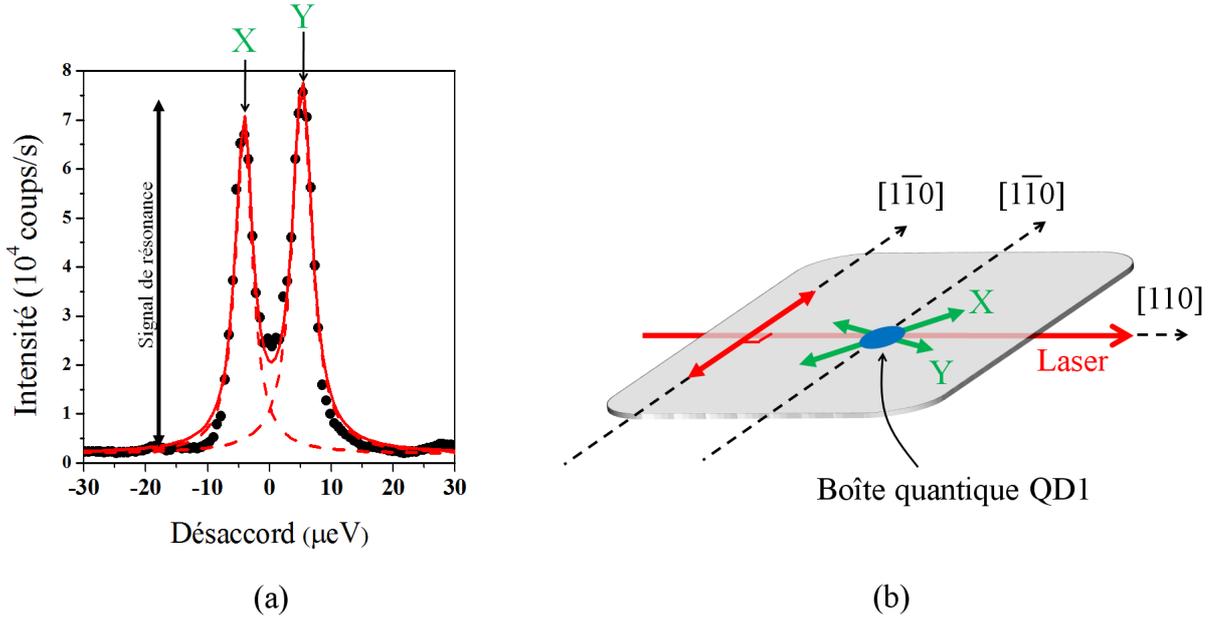


FIGURE 3.6 – (a) Spectre de PLE résonnante de QD1. (b) Schéma de la configuration d'excitation de QD1.

cristallographiques comme schématisé sur la figure 3.6(b). Des études précises en polarisation seront détaillées à la fin de ce chapitre.

Enfin, nous retrouvons sur la figure 3.6(a) l'exaltation d'un facteur 30 du signal à la résonance précédemment observée sur les résultats de PL résonnante de la figure 3.5. Notons également que ces spectres sont très bien ajustés par des profils lorentziens, comme prévu par l'équation (3.56) et en représentation théorique de la figure 3.1(a).

3.2.3 Etude en puissance d'excitation

Nous étudions la dépendance en puissance d'excitation de l'intensité d'émission résonnante et de la largeur $\hbar\Gamma'$ du spectre de PLE résonnante. Notons χ le rapport entre la puissance d'excitation et le carré de la fréquence de Rabi tel que $\chi = p_{\text{laser}}/\Omega^2$. L'intensité du signal de résonance I est donné par la suppression de la diffusion parasite du laser dans l'intensité mesuré à la résonance (figure 3.6(a)). D'après l'équation (3.56), nous obtenons :

$$I \propto \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{1 + \Omega^2 T_1 T_2} \propto \boxed{\frac{p_{\text{laser}}}{p_{\text{laser}} + p_0}} \quad (3.65)$$

où

$$p_0 = \frac{\chi}{T_1 T_2} \quad (3.66)$$

De même, la largeur $\hbar\Gamma'$ du profil lorentzien est donnée par l'équation (3.56), telle que :

$$\Gamma' = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 + \Omega^2 T_1 T_2} = \frac{2}{T_2} \sqrt{1 + \frac{p_{laser}}{p_0}} \quad (3.67)$$

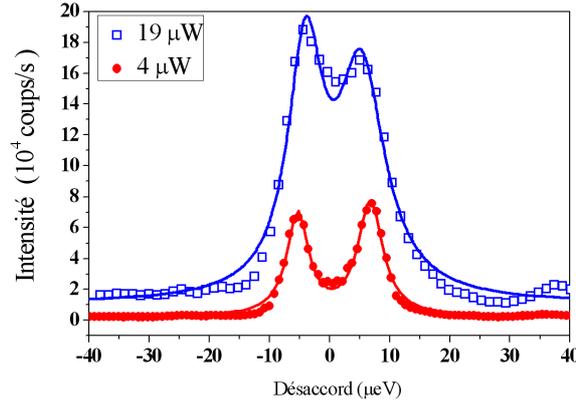


FIGURE 3.7 – Spectres de PLE résonnante de QD1 à $p_{laser} = 4 \mu W$ et $p_{laser} = 19 \mu W$.

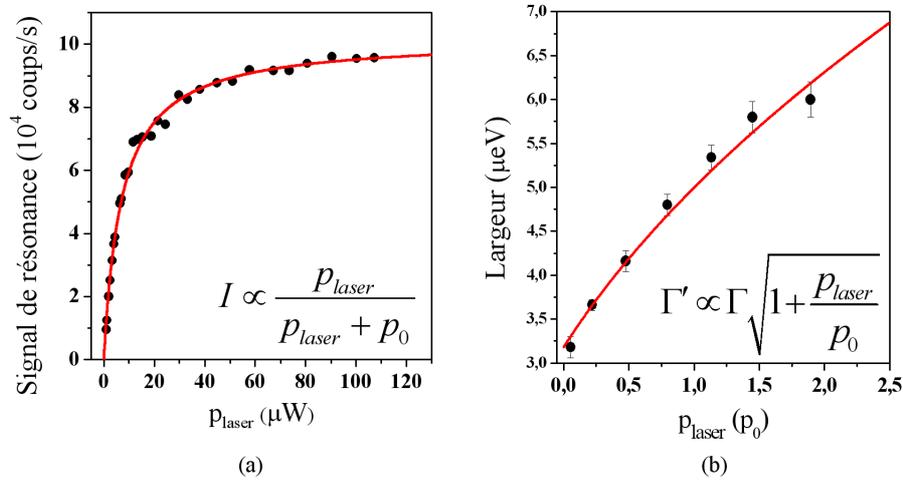


FIGURE 3.8 – (a) Dépendance en puissance d'excitation du signal de résonance de la raie Y du spectre de PLE résonnante de QD1. L'ajustement donne $p_0 \approx 731 \mu W$. (b) Dépendance en puissance d'excitation de la largeur de la raie Y du spectre de PLE résonnante de QD1. L'ajustement donne $T_2^Y \approx 413 ps \pm 8 ps$.

La figure 3.7 présente deux spectres de PLE résonnante de QD1 à $p_{laser} = 4 \mu W$ et $p_{laser} = 19 \mu W$. Nous constatons effectivement une augmentation du signal de résonance lorsque la puissance d'excitation p_{laser} augmente. Les largeurs

$\hbar\Gamma^X \approx 3.4 \mu\text{eV}$ et $\hbar\Gamma^Y \approx 3.9 \mu\text{eV}$ sont extraits de la mesure à $4 \mu\text{W}$ (le recouvrement de la raie X et Y à forte puissance ne nous permet pas d'extraire précisément leur largeur). La dépendance en p_{laser} du signal de résonance pour la raie polarisée suivante Y est représenté sur la figure 3.8(a). En ajustant ces données par l'expression théorique (3.65), nous obtenons $p_0 \approx 7.1 \mu\text{W}$. De plus, comme nous connaissons les largeurs des raies X et Y à $p_{\text{laser}} = 4 \mu\text{W}$, nous déduisons que $T_2^X \approx 482 \text{ ps}$ et $T_2^Y \approx 420 \text{ ps}$ en utilisant l'équation (3.67).

Nous réalisons une deuxième série de mesures dans une échelle de faible puissance d'excitation afin de pouvoir extraire précisément les largeurs à plusieurs p_{laser} . Les données de $\hbar\Gamma^Y$ extraites de cette série sont présentées sur la figure 3.8(a). Ces données sont parfaitement ajustées par l'expression théorique (3.67) avec $T_2^Y = 413 \text{ ps} \pm 8 \text{ ps}$. Ce résultat est cohérent avec l'estimation $T_2^Y \approx 420 \text{ ps}$ précédente.

Il est important de remarquer que la figure 3.8(a) met en évidence la saturation de l'intensité à forte puissance d'excitation, ce qui apparaît uniquement le cas pour une excitation résonnante d'un système à deux niveaux [26, 113]. En effet, nous avons vu dans la section 2.6.1 du chapitre 2 que l'intensité de fluorescence sous excitation non-résonnante décroît à forte puissance du fait de la co-existence d'états multi-excitoniques [75, 126]. Dans le cas d'une excitation résonnante, les paires électron-trou sont créées directement à l'énergie de la transition optique de l'exciton neutre et des états autres que l'exciton neutre ne peuvent pas être excités. Ce résultat confirme notre remarque sur l'excitation résonnante du chapitre 1 (voir 1.4.2) : *une boîte quantique ne peut être considérée comme un système à deux niveaux qu'en excitation résonnante.*

Les résultats expérimentaux dans la suite de ce chapitre présentent uniquement l'étude de la composante de polarisation Y de QD1⁹. Pour alléger l'écriture, nous omettons volontairement l'indice (Y) (par exemple, $T_2 \equiv T_2^Y$, $T_1 \equiv T_1^Y$, etc.). De plus, toutes les grandeurs physiques étudiées ont été mesurées dans le cas d'une excitation résonnante, excepté si des indices supplémentaires sont spécifiés.

3.2.4 Mesures du temps de vie radiatif

Les mesures du temps de vie radiatif sont réalisées à l'aide du montage de photoluminescence résolue en temps sous excitations non-résonnante et strictement résonnante. La figure 3.9(a) présente une mesure réalisée à 10K sous excitation à l'énergie d'un état excité à 55 meV de l'énergie de l'exciton neutre, tandis que la figure 3.9(b) correspond à une mesure sous excitation strictement résonnante.

9. Les résultats de la composante X sont également mesurés par les mêmes expériences. Comme la raie X et la raie Y jouent des rôles équivalentes, nous décidons de ne présenter que les résultats de la raie Y qui est la raie la plus intense des deux

dans ce dernier cas, l'accord spectral est atteint en modifiant la température ($T=24.5\text{K}$). D'une part, les deux résultats présentent une composante de faible d'amplitude et de temps caractéristique longue (i.e. 1.2 ns) qui est attribué à la réponse de notre photodiode à avalanche Id-Quantique (voir la figure 2.18 de la section 2.5.3 du chapitre 2). D'autre part, la composante de forte d'amplitude et de temps caractéristique court est attribuée à la relaxation radiative des porteurs. Nous déduisons donc les temps de vie radiatif $T_{1(non-res)}$ et $T_{1(res)}$ de la boîte QD1 sous excitation non-résonnante et résonnante respectivement. Les ajustements des données expérimentales donnent :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{1(non-res)} = 505 \pm 79 \text{ ps} \\ T_{1(res)} = 322 \pm 8 \text{ ps} \end{array} \right. \quad (3.68)$$

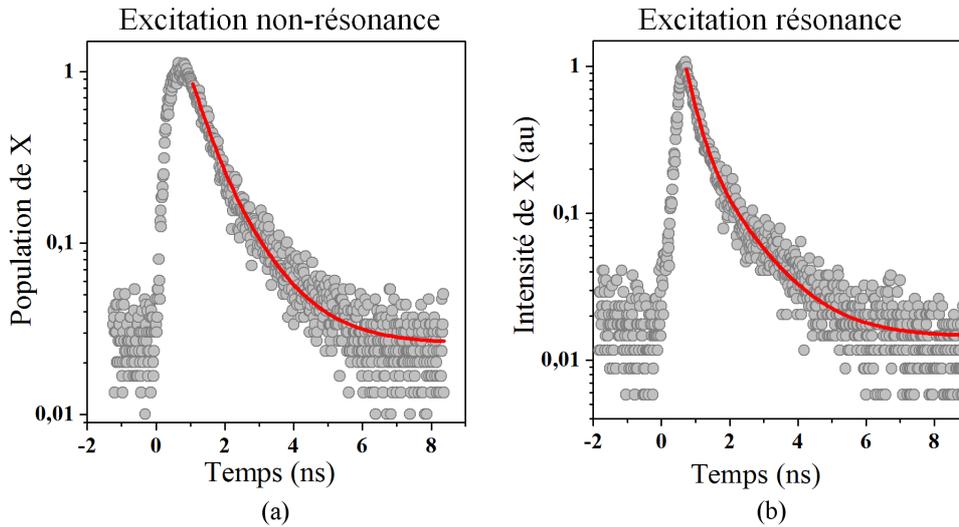


FIGURE 3.9 – Mesures du temps de vie radiatif de QD1 sous excitation non-résonnante dans la couche de mouillage (a) et strictement résonnante (b). Les courbes d'ajustement donnent : $T_{1(non-res)} = 505 \pm 79 \text{ ps}$ et $T_{1(res)} = 322 \pm 8 \text{ ps}$.

Ces résultats sont surprenants car le temps de vie radiatif est une propriété intrinsèque de la boîte quantique qui dépend du recouvrement des fonctions d'onde de la paire électron-trou. A priori, le temps de vie radiatif devrait donc être le même pour une excitation non-résonnante et strictement résonnante. Cependant, nous pouvons interpréter l'augmentation de T_1 dans le cas d'une excitation non-résonnante par la présence d'un champ électrique statique local. En effet, contrairement à l'excitation résonnante qui est très "propre", une excitation non-résonnante crée beaucoup de porteurs dans le continuum d'état. Seule une portion de ces porteurs est capturée dans la boîte quantique tandis que le reste se

recombine ou est capturé dans les pièges au voisinage de la boîte [23]. Ces pièges sont soit les défauts d'interface soit les centres d'imputée qui apparaissent lors de la croissance comme les impuretés de carbone (Cf spectre PL de la figure 2.13 du chapitre 2). Dans le cas d'une excitation non-résonnante, il existe donc un champ électrique statique local créé par les porteurs piégés au voisinage de la boîte quantique. Ce champ électrique exerce des forces opposées sur l'électron et le trou dans la boîte. Par conséquent, le recouvrement des fonctions d'onde de la paire électron-trou diminue de même que la probabilité de recombinaison radiative. Autrement dit, le temps de vie radiatif augmente. Nous remarquons que la diminution du temps de vie radiatif a été observé pour la première fois par Paillard *et al* pour les mesures sur ensembles de boîtes InAs/GaAs sous excitation résonnante sans fournir aucune explication [136].

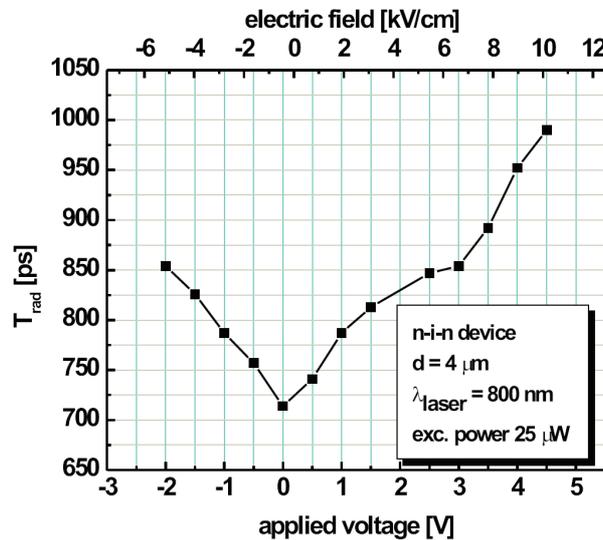


FIGURE 3.10 – Dépendance du temps de vie radiatif d'une boîte quantique unique InAs/GaAs en fonction du champ électrique latéral appliqué. Résultat de V. Stavarache [137] sur un échantillon dopé n-i-n où la boîte quantique étudiée se trouve dans la région intrinsèque.

V. Stavarache *et al* a mis en évidence l'augmentation de temps de vie radiatif d'une boîte quantique InAs/GaAs lors de la présence d'un champ électrique latéral [137]. Leur résultat de la dépendance de T_1 en fonction du champ électrique E est présenté sur la figure 3.10. Il s'agit d'un échantillon dopé latéralement tel une diode de type n-i-n. La boîte quantique étudiée se trouve dans la région intrinsèque. Ce résultat montre effectivement une dépendance linéaire de T_1 en fonction de l'amplitude du champ électrique appliqué : $T_1(E) = T_1(E = 0) + \alpha |E|$ avec $\alpha \approx 25 \text{ ps}/(\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1})$. Même si α dépend de la croissance des boîtes, nous utilisons cette valeur de α pour estimer le champ électrique local de QD1 sous

excitation non-résonnante. Nous estimons donc $|E_{non-res}| \approx 7 \text{ kV.cm}^{-1}$. Nous considérons un cas simple où ce champ électrique est créé par les charges piégées dans un seul défaut à une distance d de QD1. En supposant aussi que ce défaut a un seul état deux fois dégénérés en spin, nous déduisons que :

$$|E_{non-res}| = \frac{2e}{4\pi\epsilon_0\epsilon_{GaAs}d^2} \quad (3.69)$$

$$\Rightarrow \boxed{d \approx 18 \text{ nm}}$$

Cette estimation est du même ordre de grandeur que celle obtenue pour une autre boîte quantique (QD2), du même échantillon où la distance est de 20-25 nm (voir la section 4.2.3b du chapitre 4).

3.2.5 Fonction de corrélation du premier ordre - Spectre de l'émission résonnante

3.2.5.a Temps de cohérence

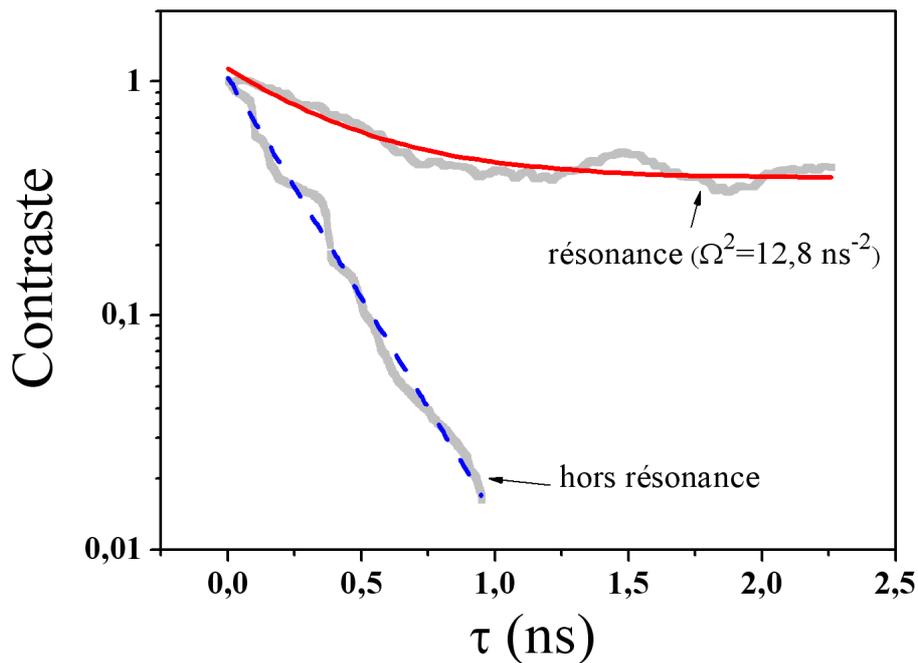


FIGURE 3.11 – *Contraste des interférogrammes de Michelson sur la luminescence de QD1 sous excitation non-résonnante (courbe bleue, tiretée) et sous excitation résonnante à faible puissance d'excitation (courbe rouge, solide). Les ajustements donnent $T_{2(non-res)} = 231 \pm 2 \text{ ps}$ et $T_2 = 412 \pm 4 \text{ ps}$.*

Sous excitation non-résonnante, la fonction de corrélation d'ordre 1 de l'émission d'une boîte quantique unique est une exponentielle décroissante dont le temps

caractéristique est le temps de cohérence $T_{2(\text{non-res})}$ de la boîte quantique [23,24] :

$$g_{(\text{non-res})}^{(1)}(\tau) \propto e^{-\frac{\tau}{T_{2(\text{non-res})}}} \quad (3.70)$$

Sous une excitation résonnante, cette fonction $g^{(1)}(\tau)$ est bien plus compliquée (voir l'équation (3.58)). Cependant, à faible puissance d'excitation, en faisant un développement limité d'ordre 2, celle-ci se simplifie :

$$\begin{aligned} g^{(1)}(\tau) &\propto e^{-\frac{\tau}{T_L}} + \left[\frac{2T_1}{T_2} (1 + \Omega^2 T_1 T_2) - 1 \right] e^{-\frac{\tau}{T_2}} \\ &\propto 1 + \left[\frac{2T_1}{T_2} (1 + \Omega^2 T_1 T_2) - 1 \right] e^{-\frac{\tau}{T_2}} \quad \text{pour } \tau \ll T_L \end{aligned} \quad (3.71)$$

Nous pouvons alors déduire simplement $T_{2(\text{non-res})}$ et T_2 à partir des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ par l'interféromètre de Michelson. D'une part, sous excitation non-résonnante, le laser Ti :Sa est utilisé en mode continu pour exciter la boîte QD1 à l'énergie de l'états excité qui se trouve à environ 55 meV de la transition fondamentale¹⁰. La mesure de $g_{(\text{non-res})}^{(1)}(\tau)$ est présentée sur la figure 3.11. Les données expérimentales sont très bien ajustées par (3.70). Nous en déduisons $T_{2(\text{non-res})} = 231 \pm 2$ ps. D'autre part, la figure 3.11 présente une mesure obtenue sous excitation résonnante avec la diode laser monomode. La mesure est réalisée à une puissance p_c correspondant à $\Omega^2 \approx 12.8 \text{ ns}^{-2}$ (la calibration de Ω^2 en fonction de la puissance sera montrée dans la prochaine partie). Les valeurs de Ω^2 et de $T_1 = 322$ ps sont utilisées pour ajuster les données par l'équation (3.71). Nous déduisons $T_{2(\text{res})} = 412 \pm 4$ ps. Cette valeur est en parfait accord avec la valeur déduite dans les précédentes études en fonction de la puissance d'excitation. En résumé :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boxed{T_{2(\text{non-res})} = 231 \pm 2 \text{ ps}} \\ \boxed{T_{2(\text{res})} = 412 \pm 4 \text{ ps}} \end{array} \right. \quad (3.72)$$

Ces résultats montrent que $T_{2(\text{res})} \approx 1.8 T_{2(\text{non-res})}$. Or il est connu que le temps de cohérence mesuré dans le cas d'une excitation d'un état excité est supérieur au temps de cohérence mesuré dans le cas d'une excitation dans la barrière ou dans la couche de mouillage [24]. Nous montrons donc que le temps de cohérence est encore allongé sous excitation strictement résonnante. Par ailleurs, $T_{2(\text{res})} \approx 1.3 T_{1(\text{res})}$, ce qui est très proche de la limite radiative.. C'est donc ici la preuve importante que *l'excitation résonnante est une excitation "propre" dans le sens où de nombreux processus non-radiatifs sont supprimés par rapport au cas d'une excitation non-résonnante.*

10. Il s'agit de l'état excité de la mesure de $T_{1(\text{non-res})}$

3.2.5.b Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ - Spectre d'émission résonnante

La mesure de $g^{(1)}(\tau)$ à la résonance de la figure 3.11 est une mesure parmi une série des mesures faites à différentes puissances d'excitation. La série complète des sept mesures est présentée dans l'annexe B. La figure 3.12(a) présente trois mesures typiques de cette série correspondant à trois régimes de couplage différents. A partir des temps de vie $T_1 \approx 322 \text{ ps}$ et de cohérence $T_2 \approx 412 \text{ ps}$ que nous avons déterminés auparavant, nous ajustons les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ par la formule théorique (3.58). Le paramètre ajustable est la fréquence de Rabi Ω . Bien que les courbes d'ajustement ne soient pas parfaites à cause de l'instabilité de l'interféromètre de Michelson (dont le bras mobile fait presque 1 m), elles reproduisent bien les mesures. Nous observons clairement un changement de régime de couplage lumière-matière entre le laser et la boîte quantique comme le prévoit la théorie. En effet, à forte puissance d'excitation, $g^{(1)}(\tau)$ présente les oscillations associées au *triplet de Mollow*. Il s'agit du premier résultat montrant jusqu'à deux périodes d'oscillation de $g^{(1)}(\tau)$ ¹¹ n'arrivent à montrer en effet qu'une seule période d'oscillation de $g^{(1)}(\tau)$. Ces oscillations s'atténuent lorsque la puissance d'excitation diminue. A faible puissance d'excitation, $g^{(1)}(\tau)$ décroît exponentiellement avec l'apparition d'un fond continu correspondant à la composante cohérente de l'émission résonnante (ce fond continue est en fait une exponentielle décroissante de temps caractéristique $T_L \gg \tau$).

Le spectre d'émission résonnante s'obtient par transformée de Fourier des courbes d'ajustements de $g^{(1)}(\tau)$. Afin de pouvoir bien présenter graphiquement la composante cohérente, nous prenons un temps de cohérence du laser de 10 ns (au lieu de 1 μs qui est le temps de cohérence correspondant à la largeur 1 neV de la diode laser). Nous observons bien une diminution de la composante cohérente lorsque la puissance d'excitation augmente. Cette composante est maximale à puissance d'excitation minimale, et le spectre présente une largeur à mi-hauteur bien inférieure à la largeur de la raie naturelle $\frac{\hbar}{T_1} \approx 2 \mu\text{eV}$ dans le cas de la limite radiative. Par conséquent, *le spectre de l'émission résonnante peut effectivement avoir une largeur beaucoup plus faible que la largeur définie par la limite radiative.*

3.2.5.c Contribution de la composante cohérente à l'émission résonnante

Les valeurs de T_1 , T_2 et Ω^2 permettent aussi d'estimer, à partir de l'équation (3.64), la contribution de la composante cohérente à l'émission résonnante. Tout d'abord, il faut déterminer la fréquence de Rabi pour chaque puissance d'excitation de la série de mesures. La courbe de calibration de la figure 3.13 représente les valeurs de Ω^2 extraites des courbes d'ajustement de $g^{(1)}(\tau)$ en fonction des puis-

11. Les résultats publiés par Muller *et al* [26]

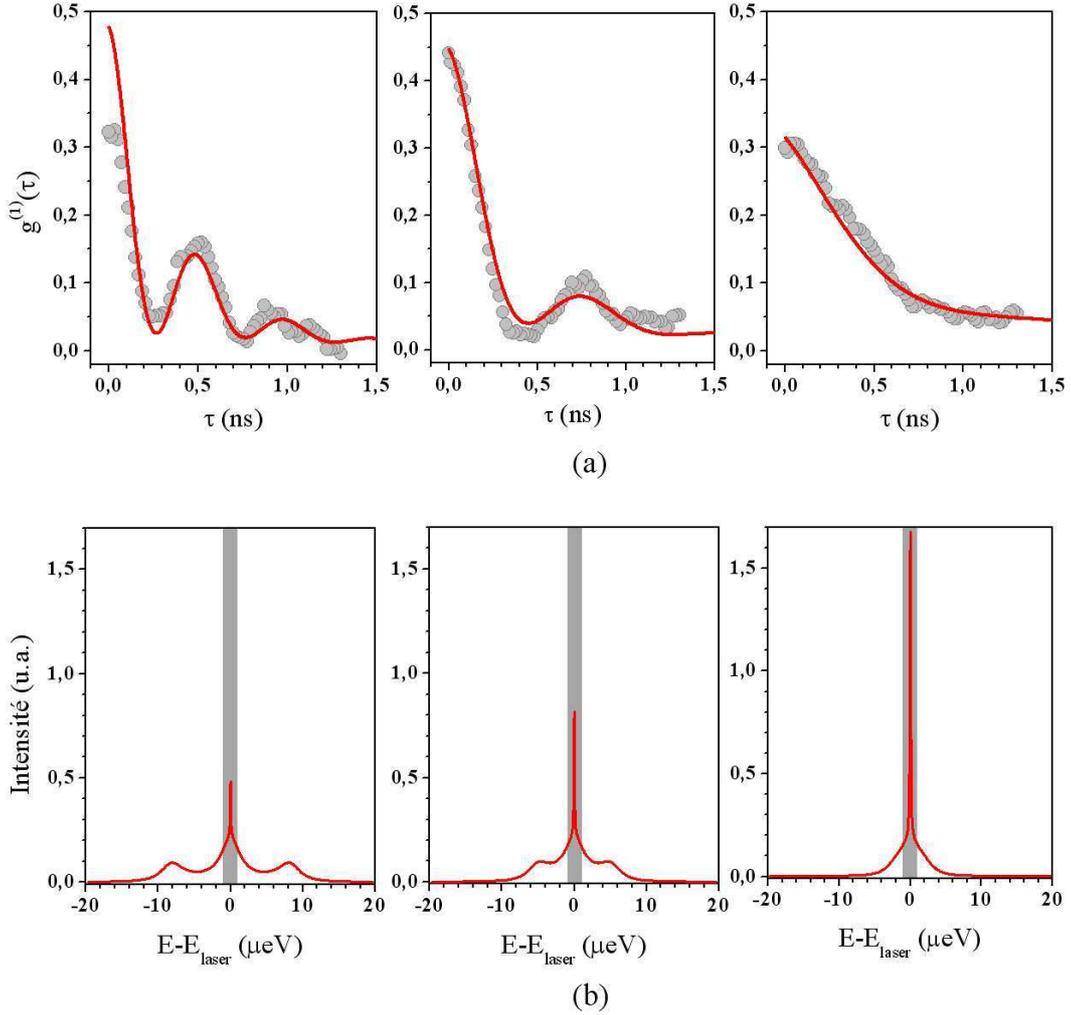


FIGURE 3.12 – (a) Mesures de la fonction $g^{(1)}(\tau)$ effectuées sur QD1 pour trois puissances d’excitation différentes. (b) Spectres d’émission résonnante calculés à partir de la transformée de Fourier des courbes d’ajustements de $g^{(1)}(\tau)$. La bande grise de la largeur $2 \mu\text{eV}$ schématise la largeur définie par la limite radiative.

sances d’excitation correspondantes¹². Cette courbe est linéaire et vérifie donc que $\Omega^2 \propto p_{\text{laser}}$. Une fois les fréquences de Rabi et les temps T_1 et T_2 connus, la courbe $\frac{I_{\text{cohérent}}}{I}$ est tracée en fonction de Ω^2 sur la figure 3.14¹³. Sur cette courbe, nous constatons que la mesure de $g^{(1)}(\tau)$ à puissance minimale (i.e. $\Omega^2 = 12.5 \text{ ns}^{-2}$ ou $p_{\text{laser}} = 1.9 p_c$) correspond à un rapport $\frac{I_{\text{cohérent}}}{I} \approx 0.27$, ce qui est loin d’être égal au rapport maximal $\left(\frac{I_{\text{cohérent}}}{I}\right)_{\text{max}} = \frac{T_2}{2T_1} \approx 0.65$ dans le cas d’un signal beau-

12. Il s’agit de la série de sept mesures présentée dans l’annexe B. Trois mesures de cette série sont déjà présentés sur la figure 3.12(a).

13. L’expression de $\frac{I_{\text{cohérent}}}{I}$ est donnée par équation (3.64)

coup plus cohérent à très faible puissance d'excitation ($\Omega^2 \ll \frac{1}{T_1 T_2}$). Cette limite intrinsèque inférieure à 1 est dû aux processus non-radiatifs qui existent encore même sous excitation strictement résonnante.

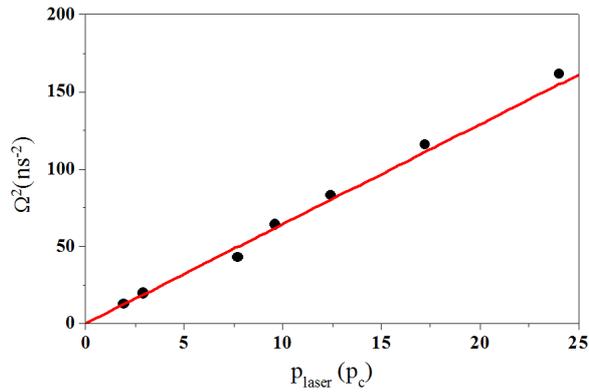


FIGURE 3.13 – Courbe d'étalonnage entre les fréquences de Rabi extraites des données de la figure 3.12 et les puissances d'excitation.

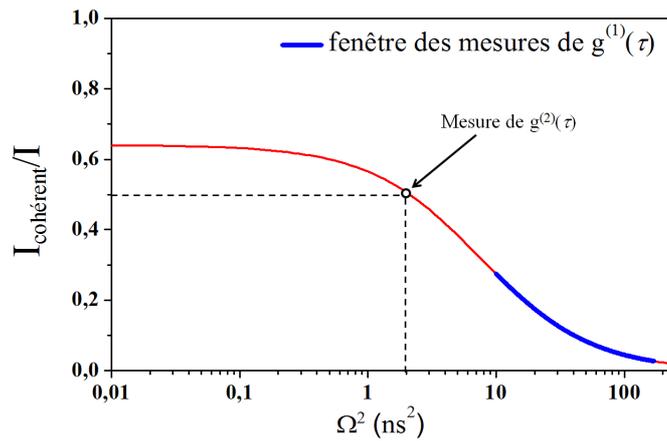


FIGURE 3.14 – Courbe théorique de la contribution de la composante cohérente à l'émission résonnante en fonction de Ω^2 , avec $T_1 = 322$ ps et $T_2 = 412$ ps.

3.2.6 Fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre de l'émission résonnante

3.2.6.a Source de photons uniques

La mesure de la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre de l'émission de QD1 à la résonance nous informe sur la statistique d'émission de la boîte quantique. Comme la diffusion parasite du laser (qui est attribuée comme un bruit) est superposée à l'émission de la boîte quantique, nous traitons d'abord les données brutes afin d'extraire la composante $g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ associée à l'émission résonnante de la boîte quantique de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ du signal total détecté :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \\ &= \frac{\langle (I_{\text{bruit}}(t) + I_{\text{QD}}(t)) (I_{\text{bruit}}(t+\tau) + I_{\text{QD}}(t+\tau)) \rangle}{\langle I_{\text{bruit}} + I_{\text{QD}} \rangle^2} \end{aligned} \quad (3.73)$$

Sachant que le bruit ne présente aucune corrélation avec le signal de boîte (ou que le temps de corrélation est très court), nous définissons le rapport entre le bruit et le signal résonnant tel que $\alpha = \langle I_{\text{bruit}} \rangle / \langle I_{\text{QD}} \rangle$. Ainsi,

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau) - \alpha(\alpha + 2)}{(\alpha + 1)^2} \quad (3.74)$$

où

$$g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I_{\text{QD}}(t)I_{\text{QD}}(t+\tau) \rangle}{\langle I_{\text{QD}}(t) \rangle^2} \quad (3.75)$$

D'après l'expression (3.74), nous pouvons donc extraire les données correspondant à $g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ à partir des données brutes de $g^{(2)}(\tau)$. Le paramètre $\alpha = 1/30$ se déduit du spectre de PLE résonnante de la figure 3.6(a), où le bruit est proportionnel au fond continu et le signal au maximum de la lorentzienne correspondant à la raie Y, et vaut $\alpha = 1/30$.

Les données traitées d'une mesure de $g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ réalisée sur QD1 à 10K sous excitation résonnante d'une puissance très faible ($\Omega^2 \approx 2 \text{ ns}^{-2}$) sont représentées sur la figure 3.15(a). Le phénomène d'*antibunching* est clairement observé avec un creux tel que $g^{(2)}(0) < 0.5$, critère pour avoir une source de photons uniques. L'émission résonnante est donc effectivement une émission de photons uniques. La condition pour avoir une source de photons uniques est remplie mais la fonction de corrélation extraite des données brutes ne s'annule pas. Ceci est dû à la résolution limitée de notre montage HBT. En effet, les données sont parfaitement ajustées par la convolution de (3.61) avec la fonction de réponse de notre montage assimilable à une gaussienne de temps caractéristique 300ps. Cette courbe d'ajustement est faite avec $\Omega^2 = 2 \text{ ns}^{-2}$, $T_1 = 322 \text{ ps}$ et $T_2 = 412 \text{ ps}$.

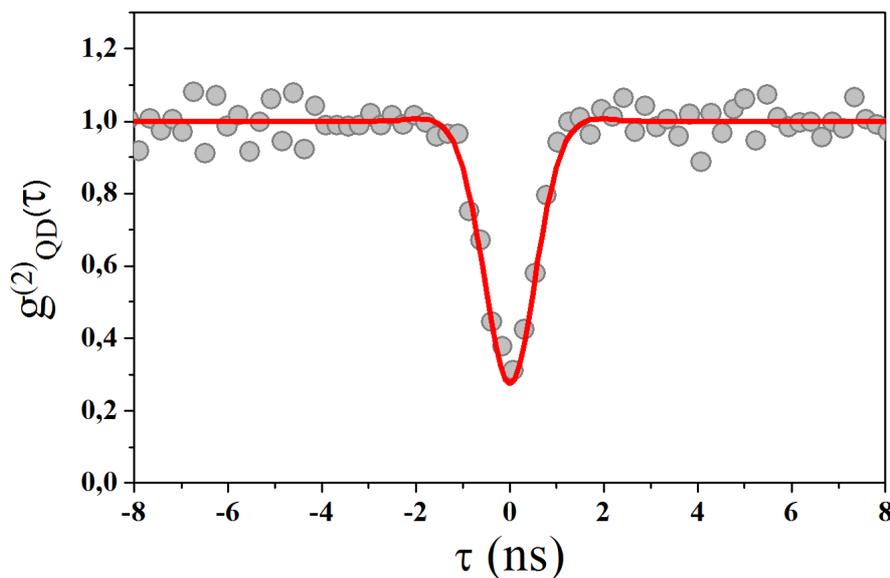


FIGURE 3.15 – Ajustement des données expérimentales auxquelles a été extraite la contribution du bruit de la diffusion parasite du laser. L’ajustement est fait avec $\Omega^2 = 2 \text{ ns}^{-2}$, $T_1 = 322 \text{ ps}$, $T_2 = 412 \text{ ps}$ et un temps de réponse du système de 300 ps.

3.2.6.b Cohérence des photons émis

L’ajustement de $g_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ de la figure 3.15 montre que la mesure est faite à une puissance beaucoup plus faible ($\Omega^2 = 2 \text{ ns}^{-2}$) que les puissances des mesures précédentes de $g^{(1)}(\tau)$. Sur la figure 3.14, cette puissance correspond à $\frac{I_{\text{cohérent}}}{I} \approx 0.5$. La moitié des photons émis ont donc une cohérence identique à celle du laser avec un temps de cohérence de l’ordre de la microseconde, tandis que l’autre moitié des photons émis ont un temps de cohérence $T_2=412 \text{ ps}$ qui est celui de la boîte quantique QD1. Dans le régime de diffusion Rayleigh résonnante, la cohérence des photons (ici 50%) n’est absolument pas limitée par la limite radiative. Il s’agit d’un nouveau dispositif quantique qui génère les photons uniques dont la cohérence est contrôlée par la largeur du laser d’excitation résonnante. Ce dernier permet d’obtenir des photons uniques d’une grande indiscernabilité nécessaires pour le développement d’expériences d’information quantique. Il faut remarquer que même à cette très faible puissance d’excitation, l’intensité d’émission résonnante est de l’ordre de 3.10^4 coups/s qui est comparable aux taux d’émission des dispositifs complexes de source de photons uniques à base de boîtes quantiques semiconductrices [138, 139]. Nous constatons aussi sur la figure 3.14 que nous pourrions encore améliorer le taux de photons ultra-cohérents jusqu’à 65% des photons émis avec une puissance d’excitation très faible. En plus, si nous effectuons une post-sélection spectrale de photons émis, nous pouvons encore augmenter le pourcentage de photons ultra-cohérent. Par exemple, une sélection

spectrale à l'aide un interféromètre Fabry Perot comme celui de S.Ates *et al* permet de filtrer le signal sur une fenêtre de $0.7 \mu eV$ [28]. Ce filtrage centré sur ω_0 laisse passer les photons ultra-cohérents¹⁴ et une portion β des photons de la composante incohérente¹⁵. Nous évaluons que :

$$\beta = \frac{\int_{0.35}^{0.35} d\omega \left(\omega^2 + \frac{3.17^2}{4} \right)^{-1}}{\int_{\infty}^{-\infty} d\omega \left(\omega^2 + \frac{3.17^2}{4} \right)^{-1}} \approx 0.14 \quad (3.76)$$

Pour une émission de 65% de photon ultra-cohérentes, le pourcentage de photons ultra-cohérents après le filtrage précédent atteindra $\frac{1}{1+0.35\beta/0.65} \approx 93\%$. Pour le cas de la mesure de $g^{(2)}(\tau)$ où 50% de photons émis sont ultra-cohérents, après le filtrage, ce pourcentage deviendra $\frac{1}{1+\beta} \approx 88\%$.

3.2.7 Etude en fonction de la température - Elargissement et déphasage à la résonance

Dans le chapitre 1, nous avons vu que l'élargissement de l'émission d'une boîte quantique unique en température via le couplage aux phonons acoustiques et optiques est de la forme : $\Gamma(T) = \Gamma(0) + aT + b \exp(-\frac{\Delta E}{k_B T})$. Nous rappelons que le couplage aux phonons acoustiques est indirect puisqu'il est relié au dépiégeage de charges assisté par phonons acoustiques dans les pièges au voisinage de la boîte quantique [104]. Ces pièges constituent donc un environnement électrostatique fluctuant, ce qui est une source de décohérence. Par ailleurs, le couplage aux phonons optiques est direct. En effet, le couplage fort exciton-phonon optique forme les états "mixtes" polarons, et c'est le temps de vie de la composante phononique des polarons qui est responsable d'un élargissement des états discrets de la boîte quantique.

Sous excitation résonnante, le laser ne crée pas de porteurs dans la barrière ou dans la couche de mouillage, et les pièges aux voisinages de la boîte ne sont donc pas (ou très peu) peuplés. Par conséquent, il n'y a pas de dépiégeages de charges assistés par phonons acoustiques. Le couplage aux phonons acoustiques est donc négligeable et $a = 0$. L'élargissement en température sous excitation résonnante est alors de la forme :

$$\hbar\Gamma(T) = \hbar\Gamma(0) + b \exp(-\frac{\Delta E}{KT}) \quad (3.77)$$

A très faible puissance d'excitation, la largeur du spectre de PLE résonnante (équation (3.67)) devient : $\hbar\Gamma' \approx \hbar\frac{2}{T_2} + \Omega^2 T_1 = \Gamma + \Omega^2 T_1$. De plus, comme le taux

14. qui correspondent à une largeur $1 neV$

15. qui correspondent à une largeur $\frac{2\hbar}{T_2} \approx 3.17 \mu eV$

de recombinaison radiative d'une boîte quantique est quasiment constant entre 7 K et 50 K [24], T_1 ne dépend pas de la température dans cette gamme. Ainsi, nous déduisons l'élargissement en température de la largeur du spectre de PLE résonnante à faible puissance :

$$\hbar\Gamma'(T) = \underbrace{\frac{2}{\hbar T_2(0)} + \hbar\Omega^2 T_1}_{\Gamma'(0)} + b \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad (3.78)$$

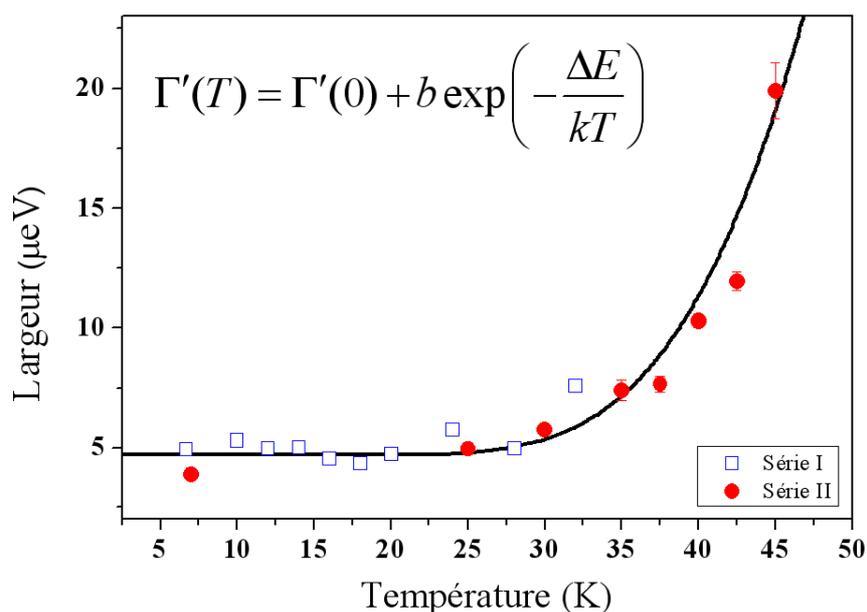


FIGURE 3.16 – Elargissement en température de la largeur du spectre de PLE résonnante de QD1 (polarisation Y), à très faible puissance d'excitation. L'ajustement est fait avec les paramètres suivants : largeur de la PLE résonnante à zéro phonon $\hbar\Gamma'(0) = 4.7 \mu\text{eV}$, énergie d'activation $\Delta E = 24 \text{ meV}$, constante $b = 7 \text{ meV}$.

La figure 3.16 présente deux séries de mesures réalisées sur QD1 de $\Gamma'(T)$ en fonction de la température, à très faible puissance d'excitation. La première série est consacrée aux hautes températures et la deuxième aux faibles températures. Nous observons que la dépendance en température de $\Gamma'(T)$ est négligeable à faible température ($T < 20\text{K}$), d'où $\Gamma'(T) \approx \Gamma'(0)$ et $T_2(0) \approx T_2(10\text{K}) \approx 412\text{ps}$. La courbe d'ajustement de $\Gamma'(T)$ est faite pour l'ensemble des données expérimentales avec une énergie d'activation $\Delta E = 24 \text{ meV}$. Cette valeur est inférieure à l'énergie des phonons optiques dans le GaAs (36 meV) ou dans l'InAs (30 meV), et il s'agit plutôt ici de l'écart énergétique entre l'état fondamental et un état de polaron. Cette valeur de ΔE est d'ailleurs cohérente avec le résultat de la thèse de C. Kammerer [24], où le couplage fort entre les phonons optiques et les

excitons est pris en compte. Dans la référence [24], C. Kammerer trouve des valeurs de ΔE comprises entre 21 et 28 meV pour des boîtes quantiques InAs/GaAs.

Finalement, nous remarquons que la valeur de T_2 à température nulle, $T_2(0) = 412$ ps, est encore inférieure à $2T_1$ (i.e. $T_1 = 322$ ps). La boîte quantique QD1 n'atteint donc pas la limite radiative, même sous excitation résonnante et à la limite 0 K où à priori le déphasage induit par interaction avec les phonons disparaît et il n'y a pas de création de charges à l'extérieure de la boîte quantique. En fait, comme l'échantillon présente beaucoup d'impuretés de carbone qui sont des centres d'accepteur, il existe donc des trous résiduels dans l'échantillon. Ces trous résiduels peuvent donc participer aux piégeage/dépiégeage même à 0 K par effet Auger. Cela explique le déphasage pur non nul à 0 K sous excitation résonnante. Néanmoins, $T_2 \approx 1.3 T_1$, ce qui est très proche de la limite radiative et permet de conclure que l'excitation résonnante est une excitation très propre où la majorité des processus non-radiatifs sont minimisés.

3.2.8 Structure fine et influence de l'environnement électrostatique

Nous terminons ce chapitre par l'étude en polarisation de l'émission des raies X et Y de QD1 sous excitation résonnante, à 10K. Cette étude permet de déterminer l'angle ϕ_0 entre les axes de symétrie de la boîte quantique (i.e. X_0, Y_0) et les axes cristallographiques (i.e. $[1\bar{1}0], [110]$), ainsi que l'angle ξ dû à l'anisotropie du mélange de trous lourds-trous légers. C'est à cause de cette anisotropie que les polarisations X et Y ne coïncident pas avec les axes de symétrie X_0 et Y_0 (voir la figure 3.17(a)).

Nous vérifions d'abord que la polarisation du laser d'excitation résonnante est bien imposé par l'axe cristallographique $[1\bar{1}0]$ (voir la figure 3.17(b)). Quant à la structure fine de QD1, la figure 3.18 regroupe les résultats de deux jours de travail notés A et B), avec deux mises à froid de l'échantillon différentes, ce qui aura son importance par la suite. Nous constatons que les diagrammes de polarisation enregistrés sur deux jours différents ont les points communs suivants :

- Les polarisations X et Y sont bien linéaires et sont effectivement décalées par rapport aux axes cristallographiques.
- Il existe une forte anisotropie entre X et Y.
- Les polarisations X et Y ne sont pas parfaitement orthogonales.

La forte anisotropie et la non-orthogonalité sont les signatures du mélange trous lourds - trous légers de l'exciton neutre de QD1. Plusieurs groupes ont observé ce mélange à la fois dans les boîtes quantiques à fortes contraintes [78, 80] et celles sans contraintes [81, 140].

Cependant, la structure fine de QD1 change aussi d'un jour à l'autre. En effet, du jour au jour B :

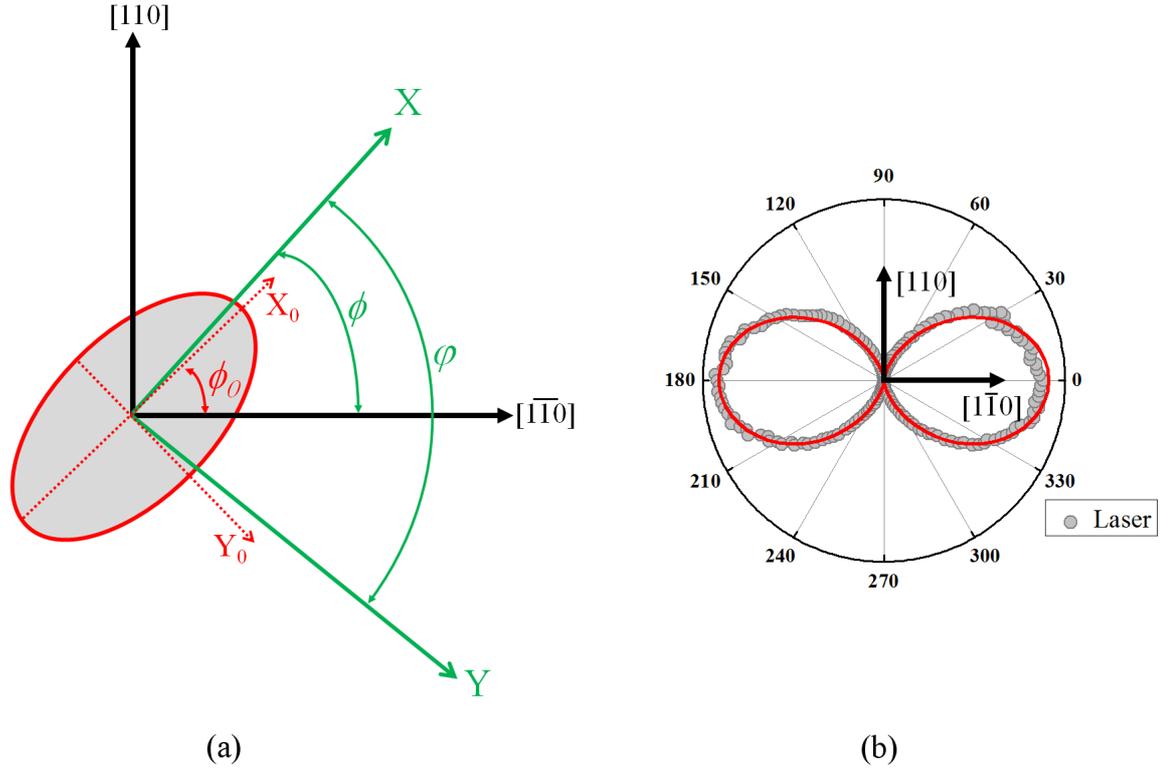


FIGURE 3.17 – (a) Les axes de symétrie X_0 et Y_0 de QD1 font un angle ϕ_0 avec les axes cristallographiques $[1\bar{1}0]$ et $[110]$. Les axes X et Y sont tiltées par rapport à X_0 et Y_0 à cause du mélange de trous lourds - trous légers. (b) Diagramme de polarisation du laser d'excitation.

- le "splitting" varie de $2 \mu\text{eV} : 9.3 \mu\text{eV} \rightarrow 11.1 \mu\text{eV}$.
 - l'anisotropie des polarisations évolue de façon drastique : la boîte semble très anisotrope un jour (B), puis assez isotrope l'autre jour (A).
 - les axes X et Y varient de quelques degrés (i.e. 5° pour X et -3° pour Y).
- Ces données sont parfaitement ajustées par la théorie présentée dans la référence [140], où :

$$\begin{cases} I_X(\theta) & \propto [a \sin(\theta + \phi_0 - 2\xi) - b \sin(\theta - \phi_0)]^2 \\ I_Y(\theta) & \propto [a \cos(\theta + \phi_0 - 2\xi) + b \cos(\theta - \phi_0)]^2 \end{cases} \quad (3.79)$$

Les ajustements donnent :

$$\text{JOUR A : } \begin{cases} \phi_0 & = 45.5^\circ \\ \xi_A & = 25^\circ \\ a_A & = 0.06 \\ b_A & = 0.96 \end{cases} \quad \text{et} \quad \text{JOUR B : } \begin{cases} \phi_0 & = 45.5^\circ \\ \xi_B & = 38^\circ \\ a_B & = 0.2 \\ b_B & = 0.8 \end{cases} \quad (3.80)$$

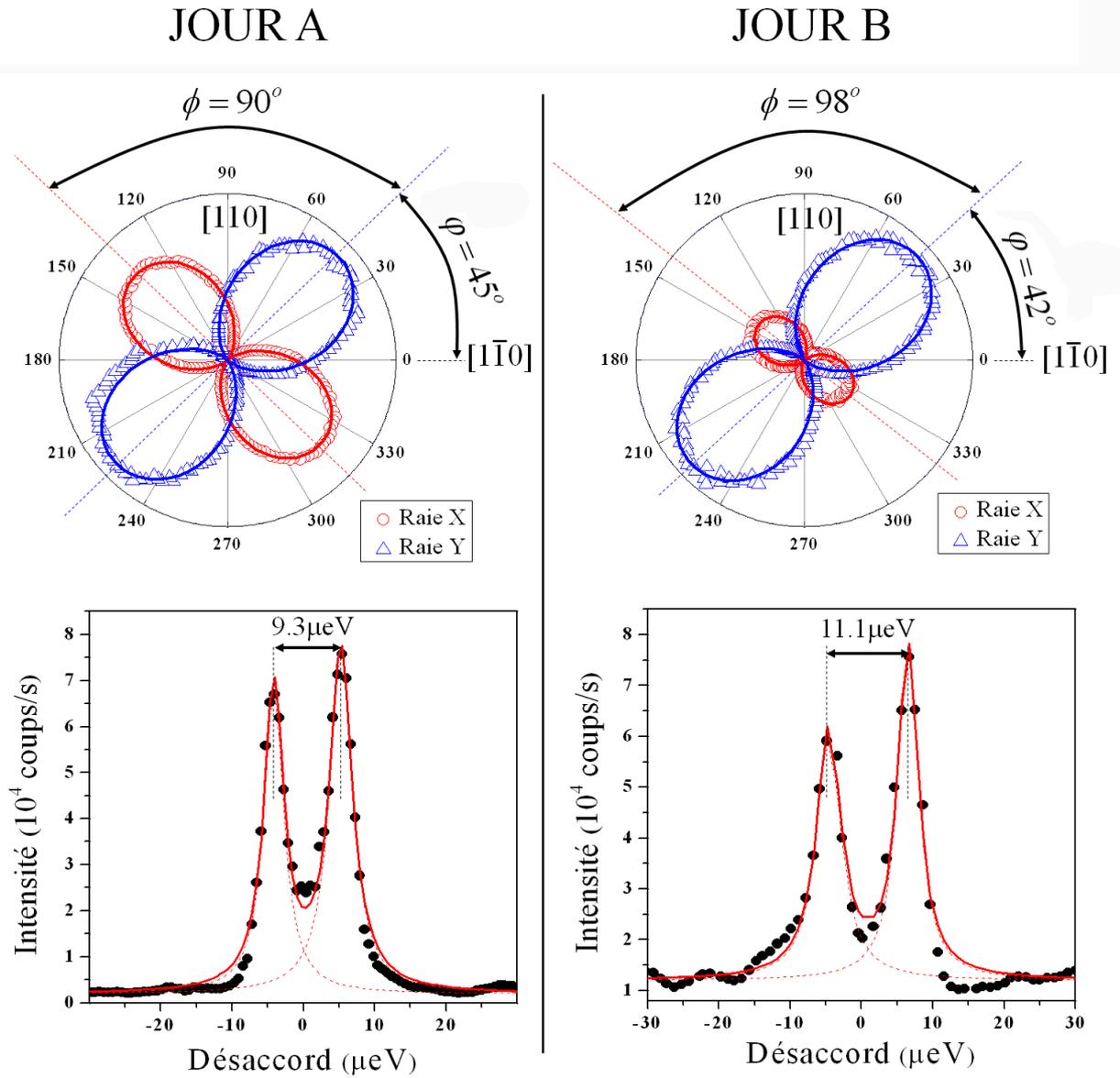


FIGURE 3.18 – Diagramme de polarisation des raies d'émission X, Y de l'exciton, mesuré à des jours différents, sur la même boîte QD1 pour une polarisation du laser parallèle à $[1\bar{1}0]$. Les spectres de PLE résonnante correspondant sont également représentés.

A partir des valeurs de a et b , nous déduisons le coefficient qui caractérise le mélange trous lourds-trous légers $|\beta|$ [80, 140] : $|\beta_A| \approx 0.91$ et $|\beta_B| \approx 0.76$. Ces coefficients sont plutôt élevés par rapport à la valeur $|\beta| \approx 0.7$ de la référence [80] pour les boîtes InAs/GaAs mais restent dans le même ordre de grandeur .

Les modifications de la structure fine de QD1 mettent en évidence l'existence d'une modification de l'environnement électrostatique pour différentes mises à froid. Cet environnement électrostatique repose en effet sur des charges piégées dans des défauts au voisinage d'une boîte quantique à basse température, et la distribution des charges dans les différents pièges peut varier suite aux mises à froid et aux réchauffements successifs du cryostat. R. Ferreira a d'ailleurs prévu théoriquement [141] le changement d'orientation et d'anisotropie des polarisations d'une boîte quantique sous le champ électrique résultant des charges piégées dans le plan de la boîte. Ce phénomène a de plus été observé pour la première fois par K. Kowalik *et al.* sur les boîtes quantiques InAs/GaAs sous champ électrique variable dans le plan, grâce à l'utilisation d'échantillons contactés électriquement [142]. De manière qualitative, la variation du champ électrique induit une modification des fonctions d'onde des électrons et des trous de la boîte quantique. Par conséquent, l'interaction d'échange et le mélange trous lourds-trous légers sont aussi modifiés.

Nous sommes à nouveau confrontés à l'influence de l'environnement sur l'émission d'une boîte quantique malgré une excitation résonnante. Bien que cet environnement électrostatique semble stable à basse température puisque la structure fine de l'exciton est identique au cours d'une même journée, une faible perturbation de cet environnement suffit donc pour faire apparaître des processus de déphasage pur.

3.3 Conclusion

Nos mesures sur l'émission résonnante d'une boîte quantique unique vérifient parfaitement les prévisions théoriques du modèle du système à deux niveaux telles que les dépendances en puissance, la fonction de corrélation de premier ordre avec les oscillations associées au *triplet de Mollow* et la fonction d'auto-corrélation de deuxième ordre avec le phénomène de *photon antibunching*. Le temps de cohérence d'une boîte quantique sous excitation résonnante est doublé par rapport au cas d'une excitation non-résonnante sur l'état p où les sources de déphasage sont pourtant déjà fortement réduites. Le rapport entre les composantes cohérente et incohérente de l'émission résonnante d'une boîte quantique unique est mesuré pour différentes puissances d'excitation. Finalement, nous montrons qu'une boîte quantique sous excitation résonnante apparaît comme une source de photons uniques où 50% (et 65% au maximum) des photons émis ont une cohérence identique à celle du laser d'excitation ($\sim 1 \mu\text{s}$). Le pourcentage des photons ultra-cohérent peut même augmenter à l'aide d'une post-sélection spectrale (nous estimons jusqu'à 93% pour un filtrage spectral par interféromètre de Fabry-Perot). Ils s'agit d'un nouveau dispositif de source ultra brillant de photons uniques ultra-cohérents où la cohérence des photons émis n'est plus limitée par la limite radiative. Les photons indiscernables générés par ce dispositif ont sans doute

des applications directes dans l'information quantique. Cependant, l'émission de boîte quantique à 0 K n'atteint pas la limite radiative sous excitation résonnante, ce qui peut s'expliquer par la présence de déphasage pur induit par un environnement électrostatique résiduel autour de la boîte quantique.

Chapitre 4

Excitation résonnante contrôlée par un gate optique

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté les résultats expérimentaux obtenus avec la boîte quantique QD1, qui illustrent la réussite de notre montage d'excitation résonnante. Cependant, la reproductibilité de ces résultats est limitée à environ 10% des boîtes quantiques étudiées. En effet, sur le reste des 90% de boîtes quantiques, nous n'observons pas de résonance dans le signal de diffusion lorsque le laser d'excitation est accordé à l'énergie de l'exciton neutre X. Il s'avère que ces boîtes quantiques sont en fait celles qui peuvent facilement capturer une charge résiduelle (un trou); et c'est la charge résiduelle qui est l'origine de l'inhibition de la résonance car l'absorption d'un photon à l'énergie de l'exciton neutre nécessite une boîte quantique neutre. Nous allons montrer également comment la résonance de l'exciton neutre peut être "débloquée" et contrôlée optiquement par un deuxième laser, non-résonant, et de très faible puissance. Ce dernier joue le rôle d'un gate optique dont les temps caractéristiques de commutation et les régimes de puissance de fonctionnement vont être caractérisés en détail.

Sommaire

4.1	Phénoménologie de l'effet de gate optique	116
4.1.1	Résultats sans gate optique	116
4.1.2	Contrôle de l'émission résonnante par un gate optique	121
4.2	Modèle théorique	126
4.2.1	Hypothèses générales	126
4.2.2	Limite à très faible puissance de gate - Modèle poissonien	128
4.2.3	Cas général - Modèle de population aléatoire (MPA)	131
4.3	Etudes expérimentales de l'effet de gate optique . . .	133
4.3.1	Intensité d'émission résonnante versus puissance du gate optique	133
4.3.2	Energie d'émission résonnante versus puissance du gate	142

4.3.3	Etude de la dynamique de charges dans les phases transitoires	147
4.3.4	Auto-corrélation de photons	156
4.4	Retour vers le système à deux niveaux	163
4.4.1	Préambule	163
4.4.2	Mesures du temps de vie radiatif	163
4.4.3	Etudes en puissance d'excitation résonnante - Mesure du temps de cohérence	165
4.4.4	Spectre d'émission à très faible puissance d'excitation résonnante	166
4.4.5	Mesure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux	167
4.4.6	Etudes en polarisation	168
4.5	Conclusion	170

4.1 Phénoménologie de l'effet de gate optique

4.1.1 Résultats sans gate optique

4.1.1.a Inhibition de la résonance de l'exciton neutre

Dans 90% des boîtes quantiques étudiées, nous n'observons pas de résonance lorsque nous réalisons un spectre de PLE résonnante de l'exciton neutre (figure 4.1(a)). Cependant, le spectre de PLE résonnante de l'exciton chargé positif montre clairement une exaltation du signal lorsque le laser est strictement résonnant avec X^+ (figure 4.1(b)). Autrement dit, la plupart des boîtes quantiques de notre échantillon ne permettent l'observation d'un signal d'émission résonnante que pour l'exciton chargé positif. Nous allons appeler ces boîtes quantiques comme étant de type A (comme *anormal*) pour les distinguer des boîtes quantiques qui permettent une excitation résonnante de l'exciton neutre. Ainsi, les boîtes quantiques de type A ont toujours au moins un trou résiduel, même dans le cas d'une excitation strictement résonnante. La présence de charges résiduelles dans la boîte quantique dans son état fondamental conduit à l'absorption de photons à l'énergie de l'exciton chargé mais pas à celle de l'exciton neutre, pour lequel la boîte quantique doit être vide dans son état fondamental. Nous pouvons considérer ce phénomène comme un effet de blocage de Coulomb où la création d'un exciton X est bloqué par la présence d'un trou résiduel dans la boîte quantique.

Cette présence de trous est cohérente avec les résultats de caractérisation du chapitre 2 où nous avons déduit que le trou résiduel de X^+ dans QD2 est a priori donné par les impuretés carbone et n'est pas photo-injecté par le laser non-résonnant. Cependant, les charges résiduelles sont souvent considérées comme étant

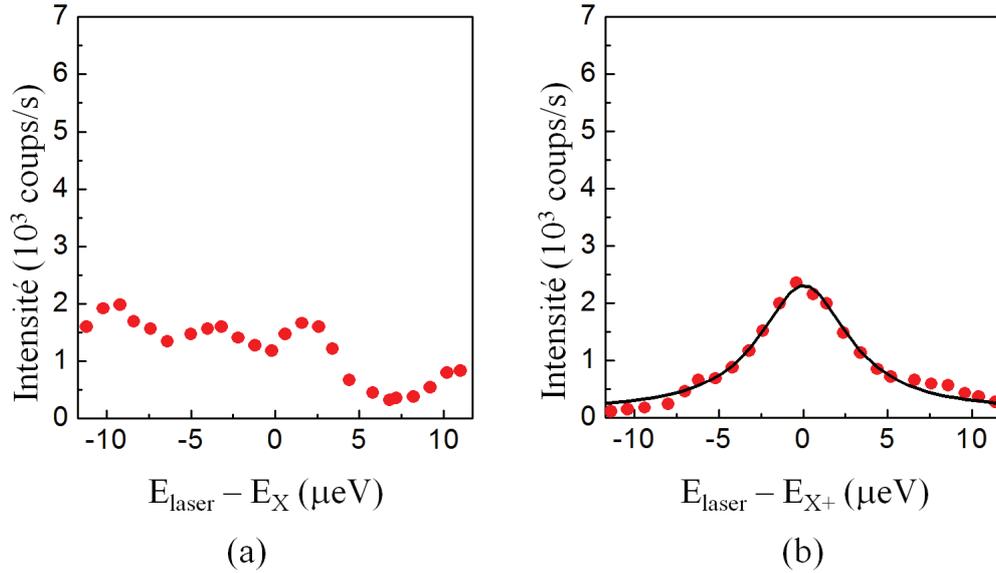


FIGURE 4.1 – Spectre de PLE résonnante de l'exciton neutre (a) et de l'exciton chargé positif (b) de la boîte quantique QD2. Le signal d'émission résonnante ne présente pas de résonance pour X , mais pour X^+ .

piégées dans les défauts de l'échantillon, qui forment l'environnement électrostatique des boîtes quantiques [23] (voir la section 1.3.2.c du chapitre 1). Dans notre cas, il s'avère qu'elles sont également présentes dans la boîte quantique. Nous en déduisons que l'environnement électrostatique peut non seulement influencer la cohérence de l'émission résonnante (voir le chapitre précédent) mais aussi en interdire son existence pour l'exciton neutre. Autrement dit, si l'excitation résonnante a pour motivation première de minimiser le déphasage dû à l'environnement fluctuant, nous observons a posteriori que l'efficacité de cette technique dépend quand même d'une manière dramatique de l'environnement de la boîte quantique.

4.1.1.b Transfert énergétique entre exciton chargé positif et exciton neutre

Un autre phénomène remarquable observé sur les boîtes quantiques de type A est le transfert énergétique de l'exciton chargé positif vers l'exciton neutre. En effet, les mesures de caractérisation présentées dans le chapitre 2 ont montré une résonance à l'énergie de X^+ dans le spectre de PLE détectée à l'énergie de X . Cette résonance est représentée sur la figure 4.2(a) où un signal de PL de l'exciton neutre de quelques centaines de coups/s est observé lors d'une excitation résonnante de l'exciton chargé positif. Notons que l'émission résonnante de X^+ est environ dix fois plus élevée figure (4.2(b)) dans les mêmes conditions d'excita-

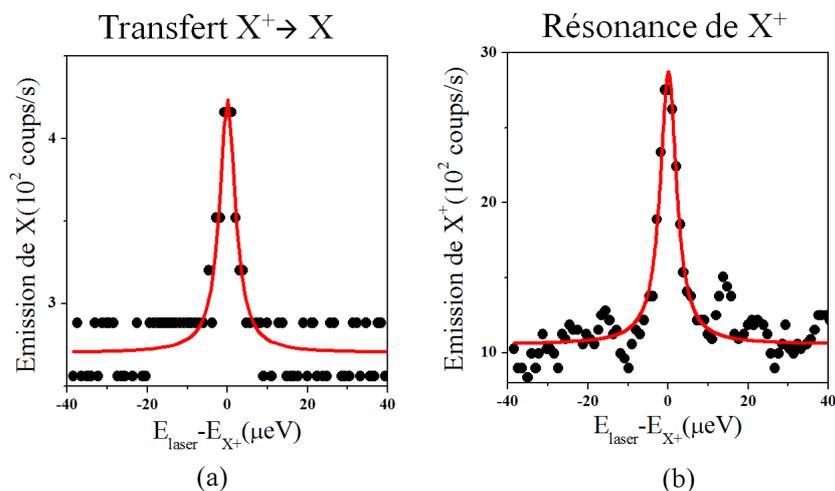


FIGURE 4.2 – PLE au voisinage de X^+ pour une détection à l'énergie de X (figure a : transfert énergétique), et à l'énergie de X^+ (figure b : émission résonnante de X^+) dans QD2, à 20K, avec la même puissance laser.

tion. Ce résultat montre qu'un des deux trous de X^+ peut s'échapper de la boîte quantique une fois que X^+ est excité de manière résonnante. C'est cet échappement qui rend la boîte neutre et permet la détection du signal de recombinaison radiative de X . Il s'agit donc d'un transfert énergétique de X^+ vers X grâce à un transfert de charge entre la boîte quantique et son environnement. Par conséquent, si des trous peuvent peupler les boîtes quantiques et conduire à un état fondamental où elles sont chargées, nous constatons que leur échappement de la boîte peut être par ailleurs photo-activé.

4.1.1.c Modèle théorique

Nous proposons ici un modèle théorique simple pour rendre compte des phénomènes observés dans la section précédente. Ce modèle repose sur quatre hypothèses principales :

1. Notre échantillon non-intentionnellement dopé a beaucoup de trous résiduels, a priori à cause des impuretés carbone. Ces trous résiduels peuvent se piéger/dépiéger dans les défauts d'interface de la couche de mouillage. Les taux de capture/échappement sont notés G et V (figure 4.3(a)).
2. Les défauts d'interface se trouvent souvent au voisinage des boîtes quantiques où la relaxation des contraintes du réseau cristallin s'est produite. Un échange de trou entre l'état Φ du défaut et l'état S_h de la boîte quantique est possible par effet tunnel si le défaut est suffisamment proche de la boîte.

3. Chaque boîte quantique de type A est supposée échanger des trous avec un seul défaut d'interface. Nous allons voir néanmoins que le phénomène sera le même si nous augmentons le nombre de défauts. Nous notons γ_{in} le taux de transfert d'un trou du défaut vers la boîte, et γ_{out} le taux de transfert inverse de la boîte vers le défaut (figure 4.3(a)). Comme le confinement d'un défaut interface est faible, l'état Φ est proche du continuum de la bande de valence, ce qui nous amène à supposer $\gamma_{in} \gg \gamma_{out}$.
4. Les niveaux Φ , S_e et S_h sont deux fois dégénérés en spin et ils peuvent capturer jusqu'à deux porteurs.

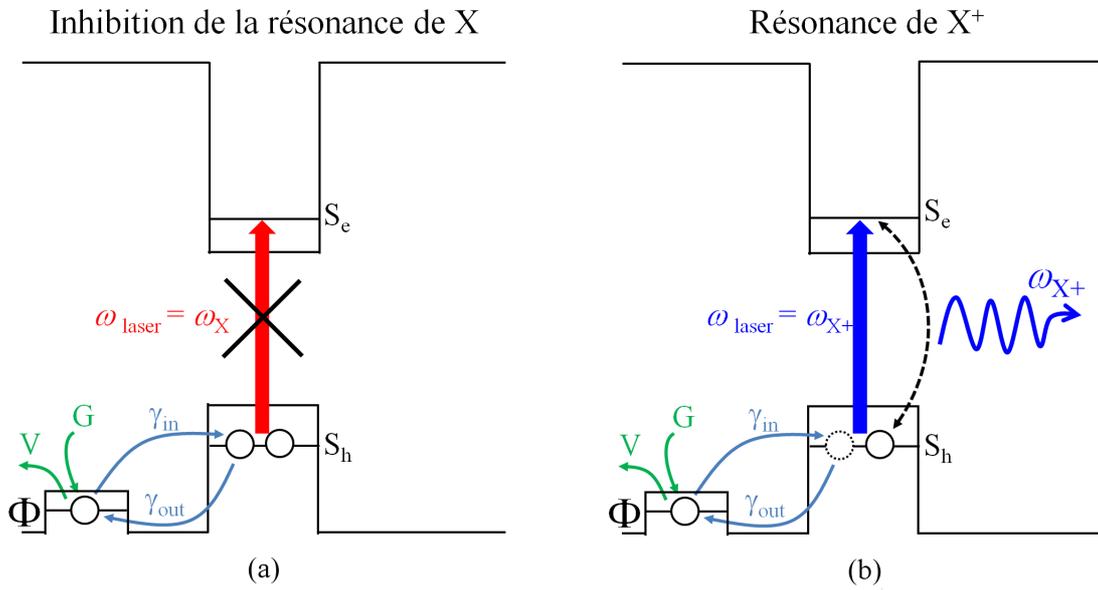


FIGURE 4.3 – Modèle théorique. (a) : état stationnaire d'une boîte quantique dont l'état fondamental de trou est quasi-résonant avec l'état d'un piège peu profond. La boîte est remplie de deux trous, et l'absorption d'un photon à l'énergie de l'exciton neutre est impossible. (b) : excitation résonnante de l'exciton chargé positif est possible (mais de faible probabilité) lorsqu'un trou de la boîte va vers le défaut.

Avec ces hypothèses, les évolutions du nombre moyen de trous dans le piège n_p et de trous(électrons) dans la boîte quantique $n_h(n_e)$ sont décrites par :

$$\frac{dn_p}{dt} = G(2 - n_p) - V n_p - \gamma_{in}(2 - n_h)n_p + \gamma_{out}(2 - n_p)n_h \quad (4.1)$$

$$\frac{dn_h}{dt} = \gamma_{in}(2 - n_h)n_p - \gamma_{out}(2 - n_p)n_h \quad (4.2)$$

$$\frac{dn_e}{dt} = 0 \quad (4.3)$$

En régime stationnaire, nous avons :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boxed{n_{p(st)} = \frac{2G}{G+V}} \\ \boxed{n_{h(st)} = \frac{2}{1 + \frac{\gamma_{out}}{\gamma_{in}} \cdot \frac{V}{G}} \approx 2} \\ \boxed{n_{e(st)} = n_e = 0} \end{array} \right. \quad (4.4)$$

En régime stationnaire, l'état S_h de la boîte quantique possède deux trous de sorte que l'état fondamental de la boîte est $|2S_h - 0S_e\rangle$. Il est donc impossible d'absorber un photon à l'énergie de l'exciton neutre dont l'état fondamental est $|vide\rangle$ (voir la figure 4.3a), d'où l'inhibition de la résonance de l'exciton neutre.

A priori, un état fondamental $|2S_h - 0S_e\rangle$ ne permet pas non plus d'absorber de photon à l'énergie de X^+ dont l'état fondamental est $|1S_h - 0S_e\rangle$. Cependant, $n_{p(st)}$ et $n_{h(st)}$ ne sont que les valeurs moyennes en régime stationnaire. Il existe en réalité des fluctuations de n_p et n_h , qui correspondent au fait que la boîte et le défaut peuvent échanger des trous par effet tunnel. Ainsi, même si l'état fondamental trouvé en régime stationnaire est $|2S_h - 0S_e\rangle$, l'état fondamental $|1S_h - 0S_e\rangle$ est possible *de temps en temps* (voir figure 4.3(b)) lorsqu'un trou s'échappe de la boîte vers le défaut. Une excitation résonnante de X^+ devient alors possible même si elle est peu efficace. Expérimentalement, nous trouvons que le signal de résonance de X^+ dans QD2 est beaucoup moins intense (i.e deux ordres de grandeur plus faible) que celui de X dans la boîte quantique QD1 étudiée dans le chapitre 3.

Il nous reste à expliquer le phénomène de transfert énergétique de X^+ vers X . Comme nous venons de le discuter, l'absorption à l'énergie de X^+ est peu probable mais néanmoins possible grâce aux fluctuations de n_h ; l'état de la boîte quantique est $|2S_h - 1S_e\rangle$ après absorption d'un photon à l'énergie de X^+ . La plupart du temps, cette paire électron-trou se recombine pour émettre un photon à l'énergie de X^+ . Cependant, les arguments du paragraphe précédent nous conduisent à la conclusion qu'un trou de X^+ peut s'échapper de la boîte vers le défaut avant la recombinaison radiative de l'exciton chargé. Lorsque ce processus (peu probable) a lieu, l'état de la boîte devient $|1S_h - 1S_e\rangle$ et elle va émettre un photon à l'énergie de X au lieu de celle de X^+ (voir figure 4.4). Il s'agit du phénomène de transfert où le signal de PL de X est observé lors d'une excitation résonnante de X^+ . Ce processus est encore moins efficace que la résonance de X^+ . Expérimentalement, le signal associé au transfert dans la figure 4.2(a) est environ 10 fois plus faible que le signal d'émission résonnante de X^+ dans la figure 4.2(b).

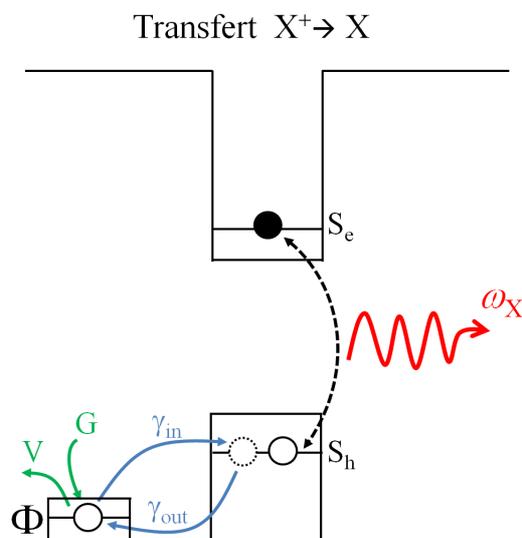


FIGURE 4.4 – *Phénomène de transfert énergétique de X^+ vers X : lorsqu'un photon à l'énergie de l'exciton chargé positif est absorbé, un trou peut s'échapper de la boîte vers le défaut avant la recombinaison radiative de l'exciton chargé. La boîte est occupée par un seul électron et un seul trou, et la recombinaison radiative de l'exciton neutre peut avoir lieu.*

En conclusion, ce modèle élémentaire que nous venons de proposer permet de rendre compte de l'inhibition de la résonance de l'exciton neutre, de l'observation de l'émission résonnante de l'exciton chargé positif, et du transfert énergétique entre exciton chargé positif et exciton neutre. Dans la suite, nous compléterons ce modèle pour interpréter quantitativement nos résultats expérimentaux relatifs à l'effet de gate optique, que nous allons à présent décrire.

4.1.2 Contrôle de l'émission résonnante par un gate optique

4.1.2.a Configuration expérimentale du gate optique

La configuration expérimentale du gate optique consiste à effectuer les mêmes expériences de spectroscopie d'excitation résonnante de X et de X^+ en ajoutant un deuxième laser autre que le laser d'excitation résonnante. Il s'agit sur la figure 4.5 d'un laser HeNe qui arrive verticalement par rapport à la surface de l'échantillon, via la voie d'excitation du montage de microscopie confocale. Ce laser est utilisé comme un *gate optique* pour tous les résultats présentés dans la suite du chapitre. Nous choisissons une puissance de gate très faible ($p_{gate} \approx 3 \text{ nW}$) pour qu'il ne peuple pas la boîte quantique. En effet, les études en puissance du chapitre 2 (figure 2.14, page 68) montrent qu'une excitation non-résonnante

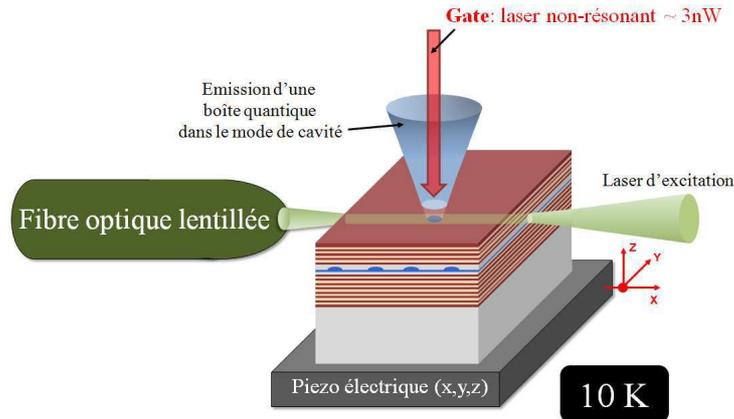


FIGURE 4.5 – Montage d'excitation résonnante avec un laser HeNe comme gate optique non-résonant.

avec un laser HeNe produit un signal de PL qui sort du bruit à partir d'une puissance $\sim 0.5 \mu W$, la puissance de saturation de la boîte étant de l'ordre de $30 \mu W$.

4.1.2.b Apparition de l'émission résonnante de l'exciton neutre

Les résultats des expériences de PLE résonnante de X et de X^+ de la boîte quantique QD2 lorsque le gate est allumé (i.e Gate ON) et éteint (i.e. Gate OFF) sont présentés sur la figure 4.6. Ces résultats montrent :

- **Gate OFF** : une résonance dans le spectre d'excitation de X^+ mais pas dans celui de X , comme discuté précédemment.
- **Gate ON** : une résonance plus élevée pour X^+ , mais surtout l'apparition d'un signal d'émission résonnante très intense pour X (avec un facteur d'exaltation de 30 par rapport au fonds hors résonance).

Ces données suggèrent qu'un laser non-résonant de très faible puissance neutralise la boîte quantique, permettant ainsi une excitation résonnante de l'exciton neutre. Le gate optique éjecte les charges résiduelles de la boîte, sans y créer de population excitonique importante. Nous anticipons par ailleurs que l'état de charge du défaut au voisinage de la boîte doit être modifié par le gate optique. Le gate optique modifie et contrôle ainsi à la fois l'état de charge de la boîte et celui de son environnement électrostatique.

4.1.2.c Amplification du transfert énergétique $X^+ \rightarrow X$

La figure 4.7 présente les spectres de PLE au voisinage de X^+ pour une détection à l'énergie de X (a :transfert énergétique $X^+ \rightarrow X$) et à l'énergie de X^+

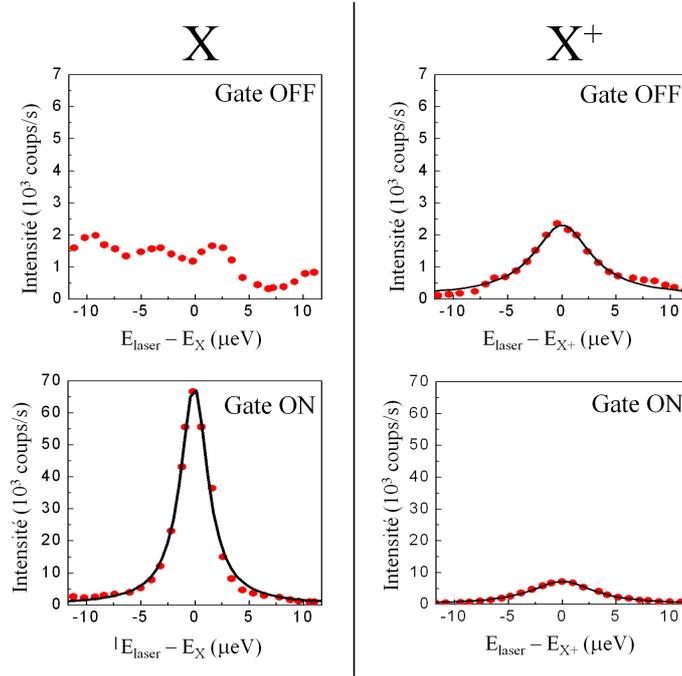


FIGURE 4.6 – Spectre de PLE résonnante de l'exciton neutre et de l'exciton chargé positif dans QD2 lorsque le gate optique est allumé (Gate ON) et éteint (Gate OFF).

(b : émission résonnante de X^+), pour la même puissance du laser d'excitation, dans les cas sans et avec gate optique. Nous constatons qu'une fois que le gate est allumé, les phénomènes de transfert énergétique et d'émission résonnante de X^+ sont amplifiés avec le même facteur. Cette observation suggère que les deux phénomènes sont liés au processus d'absorption de photon à l'énergie de X^+ puisque l'amplitude relative des deux effets est la même avec et sans gate.

D'autre part, nous constatons aussi sur la figure 4.7 que les spectres de transfert énergétique et d'émission résonnante montrent un *blueshift* lorsque le gate optique est allumé. Ce *blueshift* vaut $0.2 \mu\text{eV}$ pour le transfert (a) et $3 \mu\text{eV}$ pour l'émission résonnante de X^+ (b). Comme l'énergie de l'état X^+ dépend de l'environnement électrostatique par effet Stark induit par les charges au voisinage [99], ces résultats indiquent que le gate optique modifie l'état de charge des défauts, et que cette modification n'est pas la même pour l'effet de transfert énergétique et d'émission résonnante, ce qui n'est pas surprenant puisque dans le cas du transfert, un trou quitte la boîte et peut être capturé dans un défaut au voisinage de celle-ci.

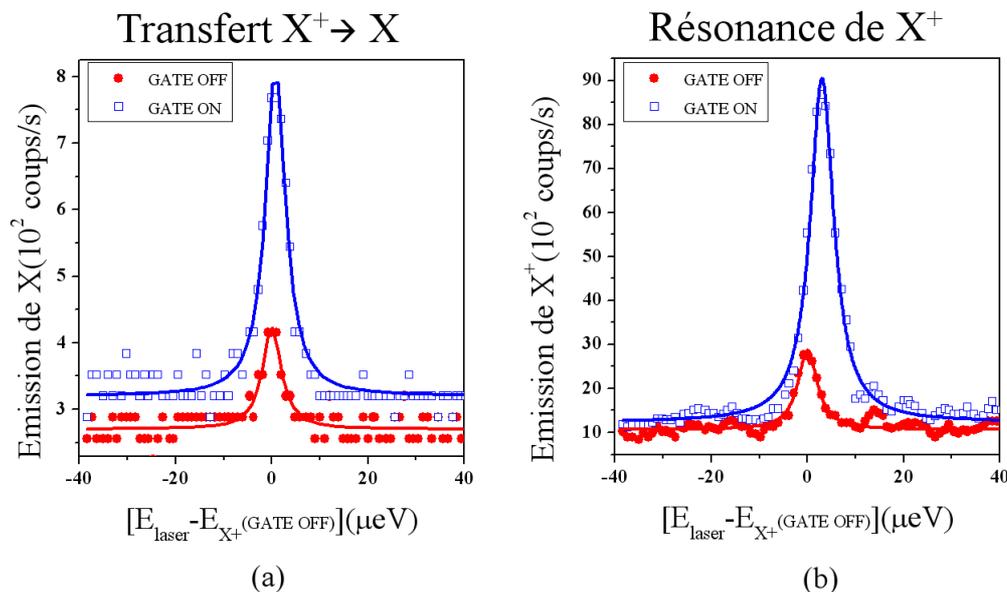


FIGURE 4.7 – PLE au voisinage de X^+ pour une détection à l'énergie de X^+ (b : émission résonnante), et à l'énergie de X (a : transfert énergétique $X^+ \rightarrow X$) dans les deux cas GATE ON et GATE OFF. Tous les spectres sont faits à la même puissance du laser d'excitation, en résonance avec X^+ . Les phénomènes de transfert énergétique et d'émission résonnante sont amplifiés de manière identique par le gate ; avec le GATE ON, le transfert énergétique $X^+ \rightarrow X$ reste beaucoup moins efficace que la résonance de X^+ .

4.1.2.d Influence de l'énergie du gate

Nous avons par ailleurs étudié l'influence de l'énergie du gate optique sur l'intensité du signal d'émission résonnante de l'exciton neutre X . Pour cela, nous avons remplacé le laser HeNe par un laser Titane Saphire continu, qui est injecté en onde guidée via la fibre lentillée utilisée pour l'excitation résonnante. Nous avons pris soin de faire varier l'énergie du gate en gardant constante sa puissance ($p_{\text{gate}} \approx 3nW$). La figure 4.8(a) présente la dépendance du signal d'émission résonnante de X dans QD2 en fonction de l'énergie du gate. Nous rappelons que la puissance du gate optique est très faible si bien que le signal détecté est, comme précédemment, complètement dominé par l'émission résonnante, la photoluminescence excitée de manière non-résonnante par le gate optique étant négligeable. Sur la figure 4.8(a), nous constatons que les variations avec l'énergie du gate sont similaires à celles enregistrées dans la configuration standard d'excitation de la photoluminescence (figure 4.8(b)). Ces résultats indiquent que les processus de neutralisation de la boîte quantique par le gate optique sont identiques à ceux responsables de la photoluminescence excitée de manière non-résonnante. *Plus spécifiquement, nos mesures suggèrent que les charges résiduelles disparaissent de*

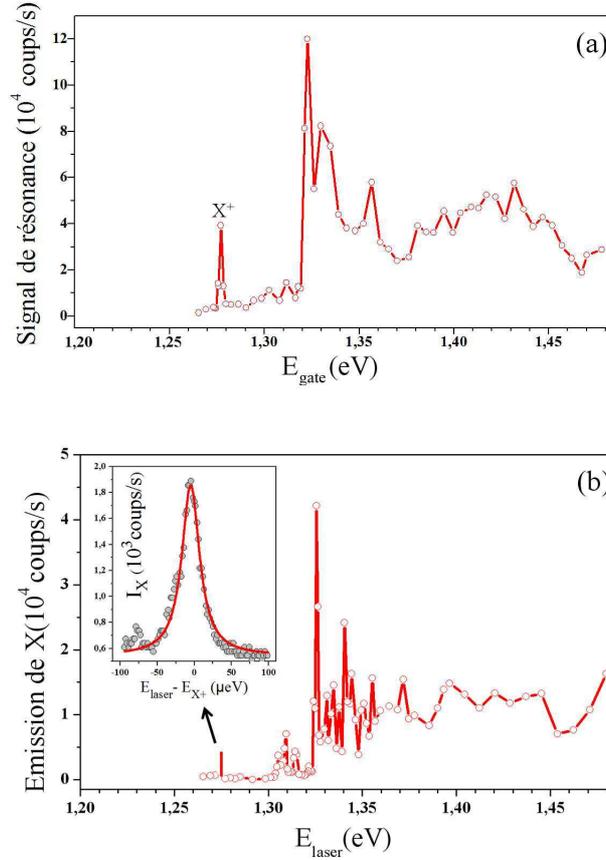


FIGURE 4.8 – (a) Variation du signal d'émission résonnante de l'exciton neutre X en fonction de l'énergie du gate optique. (b) Spectre de PLE pour une détection à l'énergie de X sur la même gamme spectrale. L'inset est un zoom au voisinage de X^+ équivalent à la figure 4.7(a)-GATE OFF.

la boîte quantique à l'issue d'une séquence absorption/relaxation/recombinaison radiative de l'exciton neutre : même si cette séquence est peu probable en raison des faibles puissances utilisées pour le gate, elle aboutit par définition à une neutralisation de la boîte, qui dure suffisamment longtemps par rapport aux processus de recapture d'un trou pour que l'émission résonnante de l'exciton neutre soit observée.

Nous allons à présent décrire le modèle théorique que nous avons développé pour interpréter quantitativement nos résultats expérimentaux, que nous présenterons et discuterons par la suite.

4.2 Modèle théorique

4.2.1 Hypothèses générales

Nous allons tout d'abord compléter le modèle théorique élémentaire, présenté dans le cas sans gate optique, avec les hypothèses suivantes :

1. Bien que le gate optique ne peuple pas la boîte quantique, il peuple la barrière GaAs (si le gate est le laser HeNe) ou la couche de mouillage (si la gate est le laser Titane Sapphire). D'après la section 1.3.1 du chapitre 1 (page 34), le nombre d'électrons N_e et de trous N_h créés par le gate sont proportionnels à $\sqrt{p_{gate}}$ où p_{gate} est la puissance du gate.
2. Ces porteurs peuvent être capturés dans la boîte quantique et dans le défaut par émission de phonons optiques ou par effet Auger. Le taux de capture par émission de phonons est proportionnel à $\sqrt{p_{gate}}$ (page 35) tandis que celui par effet Auger est proportionnel à p_{gate} (page 36). Ces mécanismes sont notés (1),(2) et (3) sur la figure 4.9.
3. Les trous peuvent s'échapper du défaut par absorptions de phonons ou par effet Auger. Ce mécanisme est noté (4) sur la figure 4.9.
4. Le taux de recombinaison radiative d'une paire électron-trou dans la boîte quantique est proportionnel à $n_e n_h$, dans l'approximation où nous ne considérons pas les effets de spin, avec n_e et n_h les nombres respectifs d'électrons et de trous dans la boîte quantique.

L'évolution du nombre moyen de trous dans le piège n_p , de trous dans la boîte quantique n_h , et d'électrons dans la boîte n_e en présence du gate optique est alors décrite par :

$$\frac{dn_p}{dt} = G(2 - n_p) - V n_p - \gamma_{in}(2 - n_h)n_p + \gamma_{out}(2 - n_p)n_h + \underbrace{\gamma_3(2 - n_p)}_{(3)} - \underbrace{\gamma_4 n_p}_{(4)} \quad (4.5)$$

$$\frac{dn_h}{dt} = \gamma_{in}(2 - n_h)n_p - \gamma_{out}(1 - n_p)n_h + \underbrace{\gamma_2(2 - n_h)}_{(2)} - \underbrace{\gamma n_h n_e}_{\text{recombinaison radiative}} \quad (4.6)$$

$$\frac{dn_e}{dt} = \underbrace{\gamma_1(2 - n_e)}_{(1)} - \underbrace{\gamma n_h n_e}_{\text{recombinaison radiative}} \quad (4.7)$$

avec

$$\begin{cases} \gamma_i &= \sum_{\alpha=1}^2 \mu_{i,\alpha} (\sqrt{p_{gate}})^\alpha \\ \gamma &= T_1^{-1} \sim 1ns^{-1} \end{cases} \quad (4.8)$$

où $\alpha = 1$ correspond aux processus assistés par émission de phonons, et $\alpha = 2$ aux processus Auger.

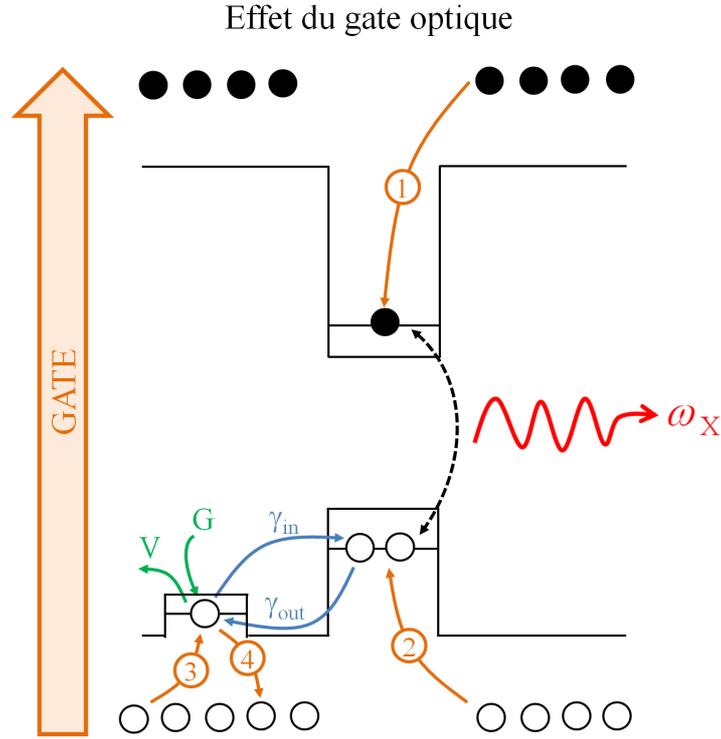


FIGURE 4.9 – *Effet du gate optique* : le gate optique crée des porteurs qui vont être capturés dans la boîte quantique ou dans le défaut. Le gate neutralise complètement la boîte quantique lorsque la capture d'électrons est en équilibre avec la capture de trous.

Notre modèle repose ainsi sur treize paramètres ajustables. Afin de clarifier la discussion du modèle théorique et l'influence respective de ces paramètres sur l'effet de gate optique, nous allons quelque peu anticiper sur nos résultats expérimentaux et donner l'ordre de grandeur de ces paramètres. Les coefficients $\mu_{1,\alpha}$ et $\mu_{2,\alpha}$ caractérisent les processus (1) et (2) de capture de charges dans la boîte quantique, et ils peuvent être mesurés par des expériences d'auto-corrélation de photons (voir la section 4.3.4). Nos mesures montrent que γ_1^{-1} et γ_2^{-1} sont de l'ordre de $10 \mu s$ pour $p_{gate} \sim 3nW$. Les coefficients G , V , $\mu_{3,\alpha}$ et $\mu_{4,\alpha}$ caractérisent quant à eux les mécanismes de capture et échappement de trous dans le défaut. Ils peuvent être mesurés à partir de l'étude du décalage énergétique de l'émission résonnante de la boîte quantique, qui est dû à la présence de charges dans le défaut (voir la section 4.3.2). Nos mesures montrent que $G^{-1} \approx 30\mu s$ et $V^{-1} \approx 60\mu s$ tandis que $\gamma_3^{-1} \approx 0.5\mu s$ et $\gamma_4^{-1} \approx 0.2\mu s$ pour $p_{gate} \sim 3nW$. D'autre part, nous pouvons mesurer γ_{in} par des études des phases transitoires lorsque le gate passe de ON→OFF (voir la section 4.3.3.b) qui donne $\gamma_{in}^{-1} \approx 160\mu s$. De fait, dans la gamme de puissance de gate explorée, nous pouvons établir la hiérarchie suivante : $G, V, \gamma, \gamma_1, \gamma_2, \gamma_3, \gamma_4 \gg \gamma_{in}, \gamma_{out}$. Par conséquent, les variations de l'état de charge de la boîte sont essentiellement dues aux processus (1),(2) et à la re-

combinaison radiative, tandis que celles du défaut sont essentiellement dues aux processus (3), (4) et capture/échappement G et V depuis le réservoir d'impuretés.

Ainsi, lorsque le gate est allumé, nous pouvons en première approximation négliger les termes de couplage boîte/défaut dans les équations (4.5), (4.6) et (4.7) :

$$\frac{dn_p}{dt} = G(2 - n_p) - V n_p + \underbrace{\gamma_3(2 - n_p)}_{(3)} - \underbrace{\gamma_4 n_p}_{(4)} \quad (4.9)$$

$$\frac{dn_h}{dt} = \underbrace{\gamma_2(2 - n_h)}_{(2)} - \underbrace{\gamma n_h n_e}_{\text{recombinaison radiative}} \quad (4.10)$$

$$\frac{dn_e}{dt} = \underbrace{\gamma_1(2 - n_e)}_{(1)} - \underbrace{\gamma n_h n_e}_{\text{recombinaison radiative}} \quad (4.11)$$

L'évolution des états de charge de la boîte et du défaut sont indépendantes dans le cas gate ON.

4.2.2 Limite à très faible puissance de gate - Modèle poissonien

Le phénomène de neutralisation des boîtes quantiques est observé même à des puissances de gate optique très faibles, où la photoluminescence excitée par le gate optique est négligeable, ce qui dans le cadre de notre modèle correspond à : $\gamma_1, \gamma_2 \ll \gamma$. Dans cette limite, les équations (4.10) et (4.11) en régime stationnaire donnent :

$$\gamma_2(2 - n_{h(st)}) = \gamma_1(2 - n_{e(st)}) \quad (4.12)$$

$$\Rightarrow n_{e(st)} = \frac{\gamma_2}{\gamma_1} \left[n_{h(st)} - 2 \left(1 - \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \right) \right] \quad (4.13)$$

$$\xrightarrow{eq(4.10)} \gamma_2(2 - n_{h(st)}) - \gamma \frac{\gamma_2}{\gamma_1} \left[n_{h(st)} - 2 \left(1 - \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \right) \right] n_{h(st)} = 0 \quad (4.14)$$

Dans la limite $\gamma_1, \gamma_2 \ll \gamma$, nous en déduisons que :

$$\left[n_{h(st)} - 2 \left(1 - \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \right) \right] n_{h(st)} \approx 0 \quad (4.15)$$

$$\Rightarrow \begin{cases} \boxed{n_{h(st)} \approx 0, \quad n_{e(st)} \approx 2 \left(1 - \frac{\gamma_2}{\gamma_1} \right) \quad \text{si } \frac{\gamma_1}{\gamma_2} > 1} \\ \boxed{n_{e(st)} \approx 0, \quad n_{h(st)} \approx 2 \left(1 - \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \right) \quad \text{si } \frac{\gamma_1}{\gamma_2} \leq 1} \end{cases} \quad (4.16)$$

Les calculs ci-dessus permettent de caractériser la charge résiduelle d'une boîte quantique selon les différents régimes de capture des porteurs dans la boîte. En fait, lorsqu'un électron(trou) est capturé dans la boîte, il va recombiner quasi-instantanément avec un trou(électron) déjà présent dans la boîte car le taux de recombinaison radiative γ est très grand devant les taux de capture γ_1 et γ_2 . Il est alors commode de se représenter la dynamique du système de la façon suivante : (i) les électrons et les trous sont capturés lentement, un par un suivant les canaux respectifs (1) et (2) ; (ii) ils s'échappent quasi-instantanément de la boîte par recombinaison radiative d'une paire électron-trou (figure 4.10). En régime stationnaire, la boîte est donc en excès de charges, dont la nature (électron ou trou) est déterminée par le processus de capture le plus efficace. Ainsi, nous avons trois états de charge résiduelle possibles dans la boîte quantique :

1. $\gamma_1 > \gamma_2$: La capture d'électrons est favorisée, l'état stationnaire de la boîte est une absence de trou et un excès d'électrons. Ces électrons sont capturés dans la boîte avec un taux $\gamma_1(2 - n_e)$ et ils disparaissent de la boîte avec un taux effectif $2\gamma_2$ qui correspond au taux de capture des trous. Cette fluctuation de la population d'électrons dans la boîte est analogue à celle des excitons dans le modèle de Grundmann *et al* [125] où les excitons sont capturés avec un taux $r(M - n_{exciton})$ (où r est le taux de pompage d'excitons, M le nombre maximum d'excitons dans une boîte, et $n_{exciton}$ le nombre d'excitons) et se recombinent avec un taux γ_r constant. En appliquant le modèle de Grundmann, la probabilité d'avoir m électrons dans la boîte peut être approximativement considérée comme une distribution poissonnienne¹ : $Pr(n_e = m) = e^{-(n_e(st))} \frac{n_e(st)^m}{m!}$, soit en particulier, $Pr(n_e = 0) = e^{-(n_e(st))}$. Comme le nombre de trous dans la boîte ne fluctue pas car $n_h(st) = 0$, la probabilité d'avoir à la fois 0 trou et 0 électron dans la boîte $Pr(n_h = 0, n_e = 0)$ est égale à $Pr(n_e = 0)$.
2. $\gamma_1 < \gamma_2$: La capture de trou est favorisée, l'état stationnaire de la boîte est une absence d'électron et un excès de trous. Avec les mêmes arguments, nous avons $Pr(n_h = 0, n_e = 0) = Pr(n_h = 0) = e^{-(n_h(st))}$.
3. $\gamma_1 = \gamma_2$: Les deux processus de capture sont en équilibre, la boîte est neutre en régime stationnaire. Les nombres de trous et d'électrons ne fluctuent pas, et nous avons $Pr(n_h = 0, n_e = 0) = 1$.

En résumé, la discussion ci-dessus montre que dans le régime de très faible puissance du gate, la probabilité d'avoir à la fois 0 trou et 0 électron dans la boîte quantique peut s'écrire en première approximation :

$$Pr(n_h = 0, n_e = 0) = e^{-(n_h(st) + n_e(st))} \quad (4.17)$$

où $n_h(st)$ et $n_e(st)$ sont les populations de trous et d'électrons en régime stationnaire, données par (4.16).

1. En fait, le modèle poissonnien n'est exact que dans le cas $M \gg 1$ [125].

Quant au laser d'excitation résonnante de l'exciton neutre, il crée quasi-instantanément (par rapport aux temps de capture de charges dans la boîte) une paire électron-trou dès que la boîte est vide. Comme cette paire électron-trou se recombine aussi quasi-instantanément avant que d'autres trous et électrons ne soient capturés, le laser résonnant sonde une boîte quantique vide sans modifier la loi de probabilité de n_h et n_e imposée par le gate optique. L'intensité du signal d'émission résonnante I_X est donc proportionnelle à $Pr(n_h = 0, n_e = 0)$, soit :

$$I_X \propto e^{-(n_h(st) + n_e(st))} \quad (4.18)$$

Avec les mêmes arguments, nous pouvons montrer que l'intensité du signal d'émission résonnante de X^+ est proportionnelle à $Pr(n_h = 1, n_e = 0)$, soit :

$$I_{X^+} \propto e^{-(n_h(st) + n_e(st))} \cdot n_h(st) \quad (4.19)$$

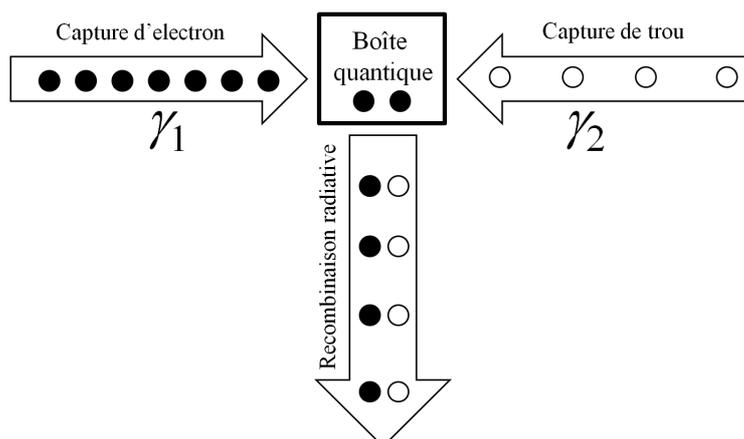


FIGURE 4.10 – Dans la limite de très faible puissance du gate optique où $\gamma_1, \gamma_2 \ll \gamma$, la recombinaison radiative est quasi-instantanée par rapport aux processus de capture. Les électrons et les trous sont capturés lentement, un par un dans la boîte quantique, et ils s'échappent quasi-instantanément par recombinaison radiative d'une paire électron-trou. La boîte quantique est en excès de charges, dont la nature est déterminée par le mécanisme de capture le plus efficace.

Nous pouvons conclure de cette discussion de la limite des très faibles puissances du gate optique que le signal d'émission résonnante de l'exciton neutre est maximal s'il y a une symétrie des processus de capture de trous et d'électrons dans la boîte quantique. Dans ce cas, la boîte quantique est neutralisée complètement par le gate optique. Pour les autres puissances du gate optique, l'asymétrie des mécanismes de capture de trous et d'électrons conduit à une charge résiduelle dont la nature est déterminée par le mécanisme de capture le plus efficace, et dont

nous décrivons les fluctuations à partir d'une distribution poissonnienne. Avec cette approche, les intensités des signaux d'émission résonnante de X et de X^+ peuvent être calculées analytiquement à l'aide de (4.18), (4.19) et (4.16). Nous allons voir dans la section 4.3.1 que cette description simplifiée permet d'aboutir à une interprétation quantitative de nos résultats dans le régime des très faibles puissances du gate optique.

4.2.3 Cas général - Modèle de population aléatoire (MPA)

4.2.3.a Description du modèle MPA

Dans le cas général où γ_1 et γ_2 peuvent être comparables au taux de recombinaison radiative γ , nous allons également tenir compte du fait que le laser d'excitation résonnante peut modifier l'état de charge de la boîte quantique (ce que nous avons négligé jusqu'à présent). De fait, les équations (4.10) et (4.11) ne sont plus valables pour une puissance arbitraire du laser d'excitation résonnante. Afin d'aboutir à une approche globale incluant les effets du gate optique et du laser résonant, nous avons développé un modèle dit de population aléatoire (MPA) similaire à celui proposé par J.G.Bresco *et al* [75]. Il s'agit en fait d'une adaptation du modèle de population aléatoire de Grundmann *et al* [125] pour les excitons. Ce modèle va nous conduire à remplacer les équations (4.10) et (4.11) en considérant tous les processus de capture, de recombinaison radiative, et de pompage résonant entre toutes les configurations de charges possibles dans la boîte quantique. Ces processus sont représentés dans le diagramme de la figure 4.11 où :

- Le taux de capture d'un électron est $\gamma_1(2 - n_e)$, soit γ_1 pour un état qui a déjà un électron, et $2\gamma_1$ pour un état sans électron, comme indiqué sur la figure 4.11.
- Le taux de capture d'un trou est $\gamma_2(2 - n_h)$, soit γ_2 pour un état qui a déjà un trou, et $2\gamma_2$ pour un état sans trou.
- Les taux de recombinaison radiative de X , X^\pm et XX sont respectivement γ_X , γ_{X^\pm} et γ_{XX} . Nous considérerons que $\gamma_X = \gamma_{X^\pm} \equiv \gamma$ et $\gamma_{XX} = 2\gamma_X$ [75].
- Le taux de pompage résonant de X est égal à r_X , celui de X^+ est noté à r_{X^+}

Ce modèle nous permet de calculer en toute généralité la probabilité P_{m-n} ($m, n = 0, 1$ et 2) d'avoir à la fois m trous et n électrons dans la boîte quantique. Pour cela, les équations (4.10) et (4.11) sont remplacées par le système différentiel linéaire :

$$\boxed{\frac{dP}{dt} = T.P} \quad (4.20)$$

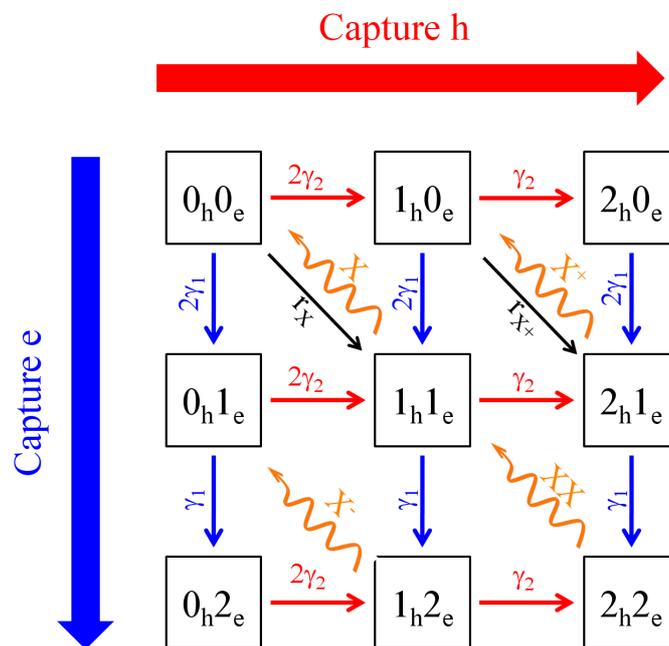


FIGURE 4.11 – Diagramme du modèle de population aléatoire (MPA).

où

$$P = \begin{pmatrix} P_{0_h-0_e} \\ P_{0_h-1_e} \\ P_{0_h-2_e} \\ P_{1_h-1_e} \\ P_{1_h-2_e} \\ P_{2_h-1_e} \\ P_{2_h-2_e} \\ P_{2_h-0_e} \\ P_{1_h-0_e} \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \sum_{(m,n)} P_{m-n} = 1 \quad (4.21)$$

et

$$T = \begin{pmatrix} -2(\gamma_1+\gamma_2)-r_X & 0 & 0 & \gamma & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 2\gamma_1 & -(\gamma_1+2\gamma_2) & 0 & 0 & \gamma & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_1 & -2\gamma_2 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ r_X & 2\gamma_2 & 0 & -(\gamma+\gamma_1+\gamma_2) & 0 & 0 & \gamma & 0 & 2\gamma_1 \\ 0 & 0 & 2\gamma_2 & \gamma_1 & -(\gamma_2+\gamma) & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \gamma_2 & 0 & -(\gamma+\gamma_1) & 0 & 2\gamma_1 & r_{X+} \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \gamma_2 & \gamma_1 & -\gamma & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -2\gamma_1 & \gamma_2 \\ 2\gamma_2 & 0 & 0 & 0 & 0 & \gamma & 0 & 0 & -(2\gamma_1+\gamma_2)-r_{X+} \end{pmatrix} \quad (4.22)$$

4.2.3.b Limites du modèle

Bien que le modèle MPA décrit ci-dessus permette de calculer l'évolution de n'importe quel micro-état de charges pour expliquer le signal d'émission résonnante de la boîte à faible ou forte puissance du gate optique ou du laser d'excitation résonnante, nous pouvons anticiper quelques limitations :

1. Le modèle se limite à des puissances du gate optique où l'effet tunnel entre la boîte quantique et le défaut est négligeable devant les processus de capture. Nous ne pourrions pas rendre compte du régime à ultra faible puissance du gate où $\gamma_{in}, \gamma_{out}$ sont comparables à γ_1 et γ_2 .
2. Le modèle ne concerne que les populations de porteurs et il n'inclut pas la description des effets cohérents. Il n'est valable que pour des puissances d'excitation résonnante r_X et r_{X^+} correspondant à la limite de couplage faible entre la boîte quantique et le laser résonnant. En effet, dans le régime de couplage fort, la variation des termes de population dépend aussi des termes de cohérence par des termes de couplage imaginaires (voir l'équation (3.54) du chapitre 3, page 91).
3. Le modèle ne s'applique que pour un gate optique non-résonnant, où les processus de photo-crédation d'électrons et trous sont décorrélés. Nous avons cependant vu sur la figure 4.8 que l'émission résonnante de l'exciton neutre peut être *déclenchée* par un gate optique en résonance avec l'exciton chargé positif. A défaut de pouvoir interpréter quantitativement les résultats dans cette configuration, nous pouvons apporter quelques éléments de réponse qualitatifs. En effet, lorsque le gate optique est en résonance avec X^+ , le processus de transfert énergétique $X^+ \rightarrow X$ est activé. Ainsi, l'absorption d'un photon du gate à l'énergie de X^+ peut conduire à la recombinaison radiative de X . Après émission, la boîte quantique se retrouve neutre, de manière complètement analogue au cas où le gate optique est non-résonnant, qui est la situation discutée en détail dans la suite.

4.3 Etudes expérimentales de l'effet de gate optique

4.3.1 Intensité d'émission résonnante versus puissance du gate optique

4.3.1.a Description des mesures

Cette section présente les résultats expérimentaux bruts sur l'émission résonnante de l'exciton neutre à différentes puissances du gate optique. Il s'agit plus précisément des données extraites des courbes de PLE résonnante de X pour

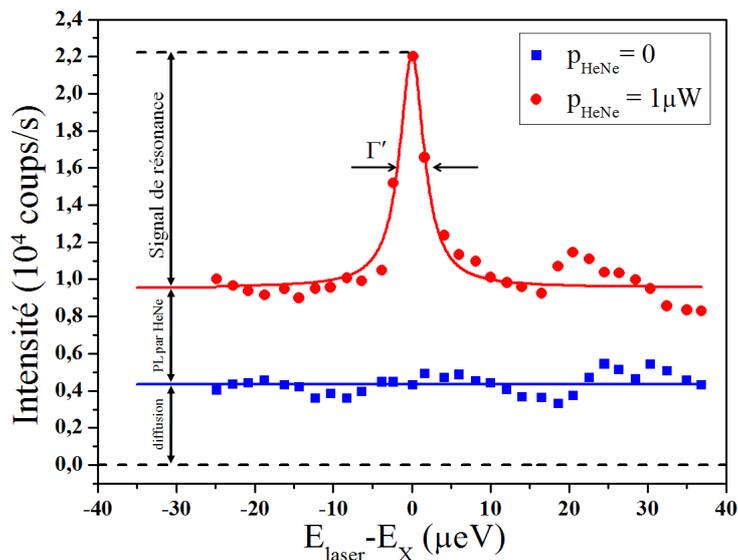


FIGURE 4.12 – PLE résonnante de l'exciton neutre X dans QD2 à 20K, avec et sans gate optique non-résonnant. La puissance du laser d'excitation résonnante est de l'ordre de $5 \mu\text{W}$ sur les deux courbes.

une puissance d'excitation résonnante constante, mais avec différentes puissances du gate optique. En comparant les spectres de PLE résonnante avec et sans gate optique, nous obtenons, comme indiqué sur la figure 4.12, à la fois le signal d'émission résonnante, mais aussi l'intensité du signal de photoluminescence excitée de manière non-résonnante par le gate optique et enfin l'énergie d'émission résonnante à la puissance du gate correspondante :

- **GATE OFF** : Il n'y a pas de signal d'émission résonnante, ni de photoluminescence non résonnante : le signal mesuré correspond à la diffusion parasite de la diode laser, que nous allons ensuite retrancher pour obtenir le signal provenant de la boîte quantique.
- **GATE ON** : La photoluminescence non-résonnante excitée par le gate optique introduit un décalage global qu'il est possible d'évaluer hors résonance. L'émission résonnante présente une dépendance spectrale marquée avec l'énergie de la diode laser, et l'énergie d'émission résonnante est tout simplement l'énergie du laser au maximum du signal.

4.3.1.b Résultats expérimentaux

La figure 4.13(a) présente les résultats expérimentaux obtenus sur QD2 à 20K. Nous avons tracé l'intensité des signaux d'émission résonnante et de photo-

luminescence non-résonnante en fonction de la puissance du gate optique. Les mesures sont effectuées pour une puissance d'excitation résonnante constante $p_{laser} \approx 5 \mu W$, en faisant varier sur 7 ordres de grandeur la puissance du gate (i.e $p_{gate} = 2 \text{ pW} \rightarrow 200 \mu W$). Le signal de photoluminescence non-résonnante montre une dépendance en puissance standard, analogue à celle décrite dans le chapitre 2 : son intensité sort du bruit pour $p_{gate} \sim 0.1 \mu W$ et elle sature pour $p_{gate} \approx 30 \mu W$. Pour le signal d'émission résonnante de X , nous constatons trois phases :

1. **Phase 1** : Le signal est détectable à partir de $p_{gate} \sim 0.1 \text{ nW}$. Il augmente jusqu'à une valeur maximum $I_{max} \approx 3.10^4 \text{ coup/s}$ atteinte à $p_{gate} \approx 3 \text{ nW}$. Nous remarquons que la photoluminescence non-résonnante est en-dessous de notre seuil de détection pendant toute cette phase.
2. **Phase 2** : Une fois le maximum atteint, le signal diminue rapidement lorsque la puissance du gate optique passe de 3 nW à 30 nW. La fin de cette phase coïncide avec le seuil d'observation de la photoluminescence non-résonnante.
3. **Phase 3** : A partir de $0.1 \mu W$, la photoluminescence excitée par le gate optique devient significative, et l'émission résonnante continue de diminuer jusqu'à devenir négligeable à partir de $p_{gate} \approx 30 \mu W$. A cette puissance, le gate sature la boîte quantique à un niveau de signal $I_{PLsat} \approx 20.10^4 \text{ coups/s}$.

4.3.1.c Interprétation

Pour ce jeu de données où la puissance du gate optique varie sur sept ordres de grandeur jusqu'à la saturation de la boîte, les simulations sont réalisées avec le modèle MPA. La photoluminescence non-résonnante excitée par le gate optique a une intensité proportionnelle à la population de l'état $|1S_h - 1S_e\rangle$, les taux de pompage résonant étant nuls, soit :

$$I_X^{(PL-nonres)} \propto \langle P_{1h-1e} \rangle_{st} \Big|_{r_X=r_{X^+}=0} \quad (4.23)$$

tandis que l'émission résonnante de X est calculée comme étant proportionnelle à la différence des populations avec et sans pompage résonant $r_X = r$:

$$I_X^{(signal-res)} \propto \langle P_{1h-1e} \rangle_{st} \Big|_{r_X=r, r_{X^+}=0} - \langle P_{1h-1e} \rangle_{st} \Big|_{r_X=r_{X^+}=0} \quad (4.24)$$

De même, l'émission résonnante de X^+ est définie à partir de la différence des populations de l'état $|2S_h - 1S_e\rangle$ avec et sans pompage résonant $r_{X^+} = r$:

$$I_{X^+}^{(signal-res)} \propto \langle P_{2h-1e} \rangle_{st} \Big|_{r_X=0, r_{X^+}=r} - \langle P_{2h-1e} \rangle_{st} \Big|_{r_X=r_{X^+}=0} \quad (4.25)$$

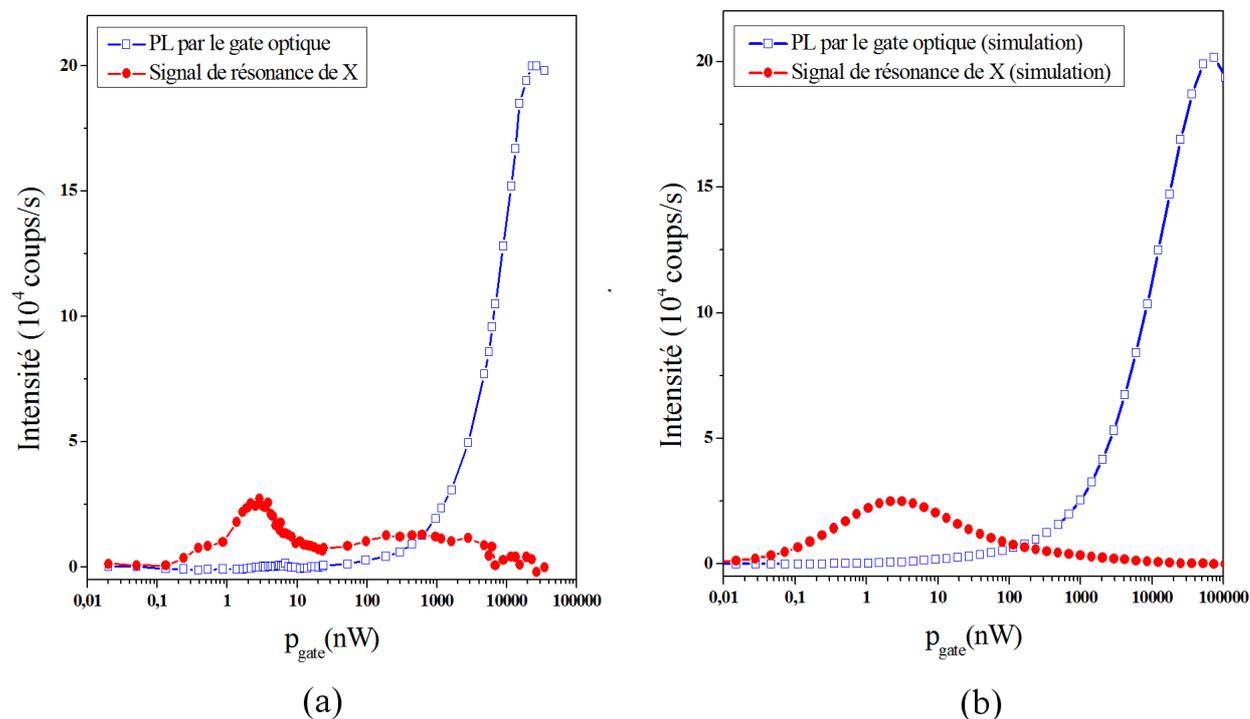


FIGURE 4.13 – Résultats obtenus dans QD2 à 20K, sur 7 ordres de grandeurs de puissance du gate optique :

(a) : Emission résonnante de l'exciton neutre et photoluminescence non-résonnante excitée par le gate.

(b) Ajustement théorique par le modèle MPA.

En utilisant les expressions des équations (4.23) et (4.24), nous avons pu reproduire (figure 4.13(b)) les résultats de la figure 4.13(a) en choisissant comme paramètres de calcul :

$$\left\{ \begin{array}{l} r = 15 \mu s^{-1} \\ \gamma = 3030 \mu s^{-1} \\ \gamma_1 (\mu s^{-1}) = 0.04 p_{gate(nW)} \\ \gamma_2 (\mu s^{-1}) = 0.06 \sqrt{p_{gate(nW)}} + 0.005 p_{gate(nW)} \end{array} \right. \quad (4.26)$$

Il est important de signaler que, dans la suite de ce chapitre, nous utiliserons ces mêmes valeurs pour interpréter tous nos autres résultats expérimentaux. L'estimation $\gamma = 3030 \mu s^{-1}$ conduit à un temps de vie radiatif de $T_1 = 330 ps$. Quant

aux lois de puissance des taux de capture γ_1 et γ_2 , nous les avons représentées dans la figure 4.14(a). Nous consacrerons un paragraphe spécifique de la section 4.3.1.d à la page 139 à la discussion de ces données très originales, sur les variations sur sept décades des taux de capture dans des boîtes quantiques.

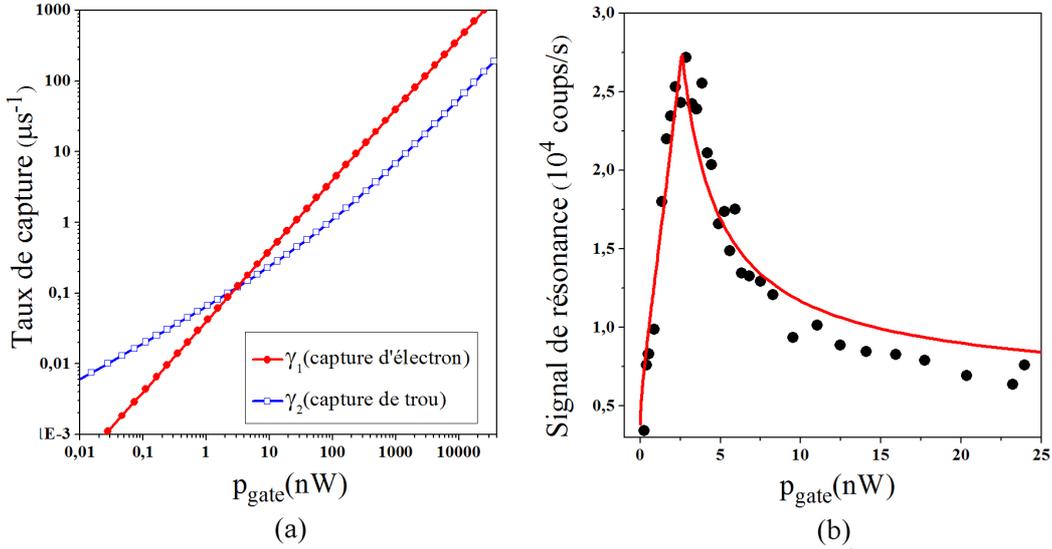


FIGURE 4.14 – (a) Taux de capture d'électron et de trou en fonction de la puissance du gate optique. (b) Ajustement théorique par le modèle poissonien des données de la figure 4.13(a) à très faible puissance.

Les données de la figure 4.13(a) montrent que le signal d'émission résonnante a des variations importantes à faible puissance du gate optique, lorsque $\gamma_1, \gamma_2 \ll \gamma$. Nous pouvons donc utiliser le modèle poissonien (voir section 4.2.2.a), ce qui nous amènera à le comparer au modèle MPA. En utilisant les équations (4.16) et (4.18) du modèle poissonien, nous constatons que nous reproduisons parfaitement les données expérimentales (figure 4.14(b)). Dans le cadre de ce modèle, la variation du signal d'émission résonnante de X à très faible puissance du gate est interprétée qualitativement de la façon suivante :

- Si $p_{\text{gate}} < 3$ nW, alors $\gamma_1/\gamma_2 < 1$ (Fig.4.14(a)) : la boîte est en excès de trous et vide d'électron (voir équation (4.16)). Lorsque p_{gate} augmente, le rapport γ_1/γ_2 augmente, le nombre de trous diminue et le signal d'émission résonnante de X augmente.
- Si $p_{\text{gate}} = 3$ nW, alors $\gamma_1/\gamma_2 = 1$ (Fig.4.14(a)) : la boîte est complètement neutralisée grâce à la symétrie des processus de capture d'électron et de trou. Le signal d'émission résonnante de X est maximal.
- Si $p_{\text{gate}} > 3$ nW, alors $\gamma_1/\gamma_2 > 1$ (Fig.4.14(a)) : la boîte est en excès d'électrons et vide de trou (voir équation (4.16)). Lorsque p_{gate} augmente, le rapport γ_2/γ_1 diminue, le nombre d'électrons augmente et le signal de réso-

nance de X diminue.

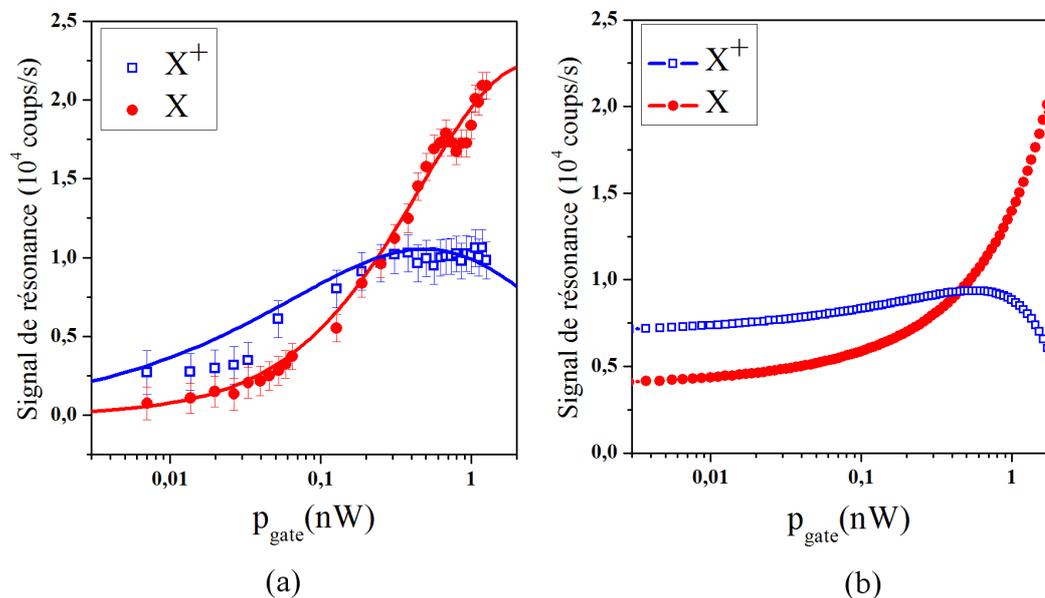


FIGURE 4.15 – Comparaison des intensités d’émission résonnante de X et X^+ dans le régime faible puissance :

(a) Données expérimentales dans QD2 à 10K et ajustement théorique par le modèle MPA.

(b) Ajustement théorique par le modèle poissonien.

Nous avons une autre série de mesures dans QD2 à 10K où nous avons pu comparer les intensités d’émission résonnante de X et X^+ . Nous ne nous intéressons qu’à la phase 1, à faible puissance du gate. Dans cette phase, nous rappelons que la photoluminescence non-résonnante excitée par le gate est complètement négligeable. Les résultats expérimentaux pour X et X^+ sont représentés sur la figure 4.15(a) avec l’ajustement théorique par le modèle MPA. L’ajustement théorique par le modèle poissonien est représenté sur la figure 4.15(b). Comme nous l’avons annoncé plus haut, les paramètres de calcul sont les mêmes que précédemment. Dans le cadre du modèle poissonien, la variation du signal d’émission résonnante de X^+ est interprétée de la façon suivante :

- Si $p_{gate} < 0.5$ nW, alors $\gamma_1/\gamma_2 < 1/2$ (Fig.4.14(a)) : la boîte est en excès de trous avec $n_{h(st)} > 1$ et vide d’électron d’après (4.16). Lorsque p_{gate} augmente, le rapport γ_1/γ_2 augmente, le nombre de trous diminue et le signal de résonance de X^+ augmente.
- Si $p_{gate} = 0.5$ nW, alors $\gamma_1/\gamma_2 = 1/2$ (Fig.4.14(a)), la boîte est en excès de trous avec $n_{h(st)} = 1$ et toujours vide d’électron. Le signal d’émission résonnante de X^+ est maximal.

- Si $3 \text{ nW} > p_{gate} > 0.5 \text{ nW}$, $1 > \gamma_1/\gamma_2 > 1/2$ (Fig.4.14(a)) : la boîte est encore en excès de trous mais $n_{h(st)} < 1$ et elle est toujours vide d'électron d'après (4.16). Lorsque p_{gate} augmente, le rapport γ_1/γ_2 augmente, le nombre de trous diminue et le signal d'émission résonnante de X^+ diminue.

Enfin, nous terminons cette partie par une comparaison des calculs théoriques dans le cadre des modèles MPA et poissonien. Les charges résiduelles dans la boîte sont données par le nombre d'électrons et de trous en régime stationnaire. Les valeurs de $n_{h(st)}$ et $n_{e(st)}$ peuvent être calculées soit par le modèle poissonien (4.16), soit par le modèle MPA, en utilisant les expressions suivantes :

$$\begin{cases} n_h &= P_{1_h-0_e} + P_{1_h-1_e} + P_{1_h-2_e} + 2(P_{2_h-0_e} + P_{2_h-1_e} + P_{2_h-2_e}) \\ n_e &= P_{0_h-1_e} + P_{1_h-1_e} + P_{2_h-1_e} + 2(P_{0_h-2_e} + P_{1_h-2_e} + P_{2_h-2_e}) \end{cases} \quad (4.27)$$

Les figures 4.16(a) et (b) présentent les simulation numériques du nombre de trous et d'électrons dans QD2 en fonction de la puissance du gate optique. Nous constatons que les deux modèles donnent les mêmes variations de $n_{h(st)}$ et $n_{e(st)}$ et la même puissance de croisement (i.e. $n_{h(st)}(3 \text{ nW}) = n_{e(st)}(3 \text{ nW})$). Cependant, le modèle poissonien donne un état stationnaire sans charge pour $p_{gate} = 3 \text{ nW}$ tandis que le modèle MPA donne $n_{h(st)}(3 \text{ nW}) = n_{e(st)}(3 \text{ nW}) = 0.5$. En fait, dans le modèle poissonien, nous supposons que $\gamma_{X^+} = \gamma_{X^-} = 2\gamma_X$ et $\gamma_{XX} = 4\gamma_X$ en utilisant un taux recombinaison radiative $\gamma n_h n_e$ qui néglige les effets de spin. Ces effets de spin sont bien pris en considération dans le modèle MPA où $\gamma_{X^+} = \gamma_{X^-} = \gamma_X$ et $\gamma_{XX} = 2\gamma_X$. De fait, si le modèle poissonien nous permet d'expliquer de façon simple nos résultats expérimentaux, le modèle MPA conduit à une description plus fine et plus complète, valable sur toute la gamme de puissance explorée.

4.3.1.d Discussion des taux de capture

Nous allons d'abord comparer les taux de capture γ_1, γ_2 avec ceux qui sont calculés dans la littérature [83–85]. Pour cela, il nous faut convertir les puissance d'excitation en densités de charge puisque les lois théoriques de la littérature sont plutôt calculées en densités de charge. Comme l'absorption du laser HeNe (1.96 eV) crée des paires électron-trou dans la barrière GaAs, une puissance de 1 nW pour le gate optique correspond à environ de 10^{10} paires électron-trou par seconde dans la barrière GaAs, ce qui conduit à un coefficient C de $10^{10} \text{ nW}^{-1} \text{ s}^{-1}$ dans l'équation (1.32) du chapitre 1 (page 34). A partir de cette équation, en prenant un taux de recombinaison radiative de l'exciton massif $\gamma_{GaAs} \approx 1 \text{ ns}^{-1}$ et un diamètre $d = 2 \mu\text{m}$ du spot laser HeNe, nous obtenons :

$$n_{(m-2)} \approx 10^{12} \sqrt{p_{gate(nW)}} \quad (4.28)$$

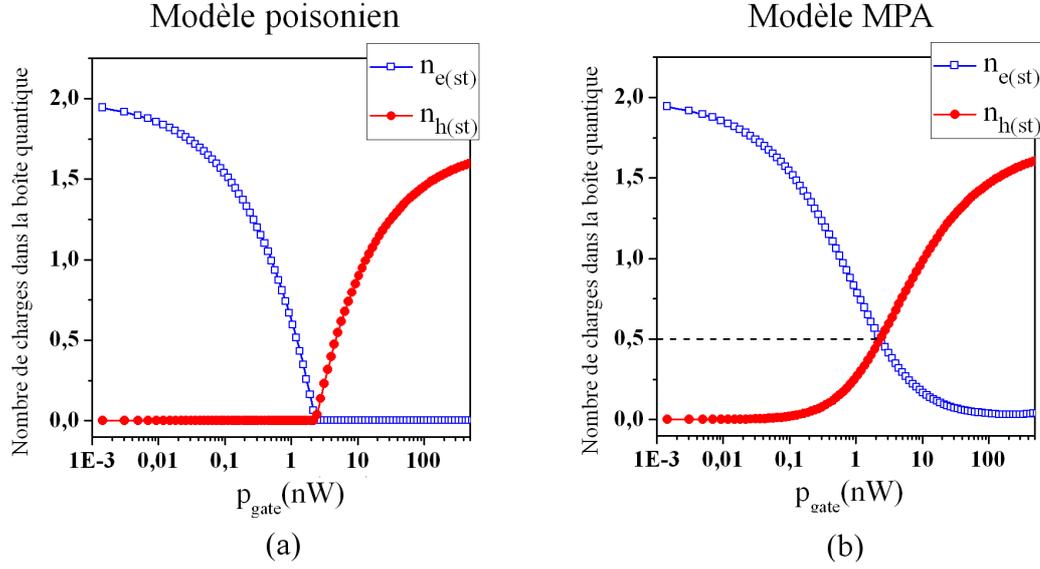


FIGURE 4.16 – Comparaison des modèles poissonien (a) et MPA (b) pour le calcul des nombres de trous et d'électrons dans QD2 en fonction de la puissance du gate optique.

où n est la densité de porteurs photo-crées dans la barrière GaAs. Par conséquent, les lois de puissance de γ_1 et γ_2 de (4.26) deviennent :

$$\begin{cases} \gamma_1 = C_e^{Auger} \cdot n^2 \\ \gamma_2 = C_h^{Auger} \cdot n^2 + A_h^{LO} \cdot n \end{cases} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} C_e^{Auger} = 4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^4/\text{s} \\ C_h^{Auger} = 5 \cdot 10^{-21} \text{ m}^4/\text{s} \\ A_h^{LO} = 6 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s} \end{cases} \quad (4.29)$$

Pour les coefficients C_e^{Auger} et C_h^{Auger} de capture d'électron et de trou par effet Auger, nos estimations sont en très bon accord avec les calculs de Uskov *et al* [85] qui prédisent $2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^4/\text{s}$ pour les boîtes quantiques InAs/GaAs de rayon 10-15 nm, et avec les calculs de Magnúsdóttir *et al* [84] qui prédisent $10^{-22} - 10^{-20} \text{ m}^4/\text{s}$ pour les boîtes quantiques InAs/GaAs de rayon 6-12 nm.

Pour le coefficient A_h^{LO} de capture de trou par émission de phonons optiques, notre estimation de $6 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$ est équivalente à un coefficient $\tilde{A}_h^{LO} = A_h^{LO} \cdot e_{GaAs} = 1,8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$ où $e_{GaAs} \approx 300 \mu\text{m}$ est l'épaisseur du substrat GaAs de notre échantillon. Cette valeur est aussi en très bon accord avec les calculs de Magnúsdóttir *et al* [83] qui prédisent $3,8 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$.

D'autre part, les expressions de γ_1 et de γ_2 montrent que la capture de trous est gouvernée à la fois par des processus assistés par phonons et par effet Auger tandis que la capture d'électrons n'est due qu'à des processus Auger. En fait, pour qu'une boîte quantique puisse capturer un électron(trou) du continuum vers

un état discret M d'électron(trou) par émission de phonons optiques, il faut que l'énergie de confinement $E_c^{(M)}$ entre M et la couche de mouillage soit plus petite que l'énergie d'un phonon optique $\hbar\omega_{LO} \approx 36 \text{ meV}$ (voir section 1.3.1.a du chapitre 1, page 35). Ainsi, si le confinement des électrons(trous) dans la boîte quantique est trop fort, la capture d'électron(trou) par émission de phonons optiques est beaucoup moins efficace. Bien que nous n'ayions pas d'information quantitative sur le confinement des électrons et des trous dans notre échantillon, nous pouvons supposer que ce confinement est similaire à celui de boîtes quantiques fabriquées dans le même bâti MBE (i.e. groupe de P.M Petroff de l'Université de Santa Barbara) et qui luminescent à la même énergie (i.e. 1.27 eV). Le confinement dans QD2 peut être supposé identique à celui de la référence [143], présenté dans la figure 4.17. Nous constatons sur cette figure que $E_c^{(S_h)} < \hbar\omega_{LO}$ tandis que $E_c^{(P_e)}, E_c^{(S_e)} > \hbar\omega_{LO}$, si bien que la capture de trous est a priori efficacement assistée par émission de phonons optiques, contrairement à la capture d'électrons.

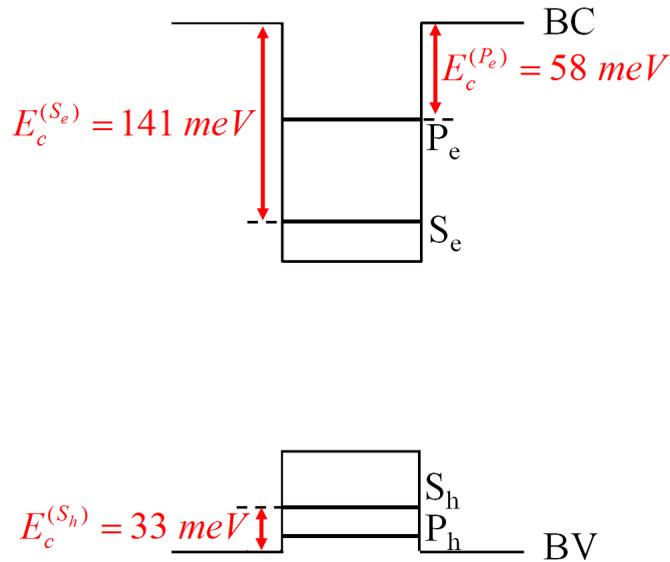


FIGURE 4.17 – *Energie des états confinés d'électron et de trou d'une boîte quantique InAs/GaAs similaire à QD2, i.e. dont la croissance est réalisée par le groupe de P.M. Petroff de l'Université Santa Barbara, et dont l'énergie d'émission est 1.27 eV [143].*

En plus, nous remarquons sur la figure 4.14(a) qu'à forte puissance du gate, lorsque la photoluminescence non-résonnante est observée, les processus de capture sont complètement pilotés par des effets Auger. Là encore, ce résultat est bien en accord avec les travaux expérimentaux de Ohnesorge *et al* qui trouve que les processus de capture sont assistés par absorption de phonons à faible densité d'excitation non-résonnante, et au contraire assistés par effet Auger à forte densité d'excitation non-résonnante [82]. Par ailleurs, nous trouvons que le coefficient

de capture Auger d'électrons est 8 fois plus grand que celui des trous. Cela peut être expliqué par un déséquilibre entre le nombre de trous N_h et le nombre d'électron N_e dans la barrière. En effet, beaucoup de trous créés dans la barrière par le gate optique vont être facilement capturés vers des défauts, en particulier les impuretés carbone C^- , ce qui conduit à $N_h \leq N_e$. Ainsi, les mécanismes de capture par effet Auger, dont l'efficacité est proportionnelle au nombre de porteurs, seront plus importants pour les électrons que pour les trous.

En conclusion, nos études du signal d'émission résonnante des excitons neutre et chargé sur sept ordres de grandeur de puissance du gate optique nous ont permis de déterminer la nature des processus de capture de porteurs dans une boîte quantique. Tandis que d'autres groupes [75, 82] ont auparavant utilisé la photoluminescence simplement excitée de manière non-résonnante pour étudier la captures de porteurs, nos expériences tirent profit de manière originale de l'excitation résonnante pour sonder l'état fondamental de la boîte, qui est déterminé par la capture des électrons et des trous créés par le laser non-résonnant. Cette méthode nous donne en particulier accès à des processus de capture ultra-lents dans les régimes de très faible puissance du gate où la photoluminescence non-résonnante est complètement négligeable. A contrario, lorsque la photoluminescence non-résonnante est observée, les taux de capture sont déjà au moins de l'ordre de ns^{-1} [75]. Dans le cadre très inhabituel de nos expériences, le modèle de population aléatoire que nous avons utilisé nous permet d'estimer des taux de capture γ_1, γ_2 qui varient de quelques ms^{-1} à quelques centaines de ps^{-1} dans la gamme de puissance explorée (i.e. 7 ordres de grandeur). Il faut souligner enfin que nos estimations de γ_1, γ_2 sont en très bon accord avec les calculs théoriques de captures par effet Auger et par émission de phonons optiques et permettent une première vraie confrontation théorie/expérience sur le sujet de la capture de porteurs dans des boîtes quantiques.

4.3.2 Energie d'émission résonnante versus puissance du gate

La figure 4.18 présente les données expérimentales relatives à l'énergie de l'émission résonnante E_X de l'exciton neutre, et E_{X^+} de l'exciton chargé, extraites de la série de mesures correspondant à la figure 4.15. Ces résultats montrent que dans le régime des très faibles puissances du gate optique, il se produit d'abord un *red shift* de quelques μeV pour X et X^+ , puis un *blue shift* comparable lorsque p_{gate} augmente. Le changement de phase *red shift* \rightarrow *blue shift* a lieu pour $p_{gate} \approx 0.05 nW$. Cette puissance du gate optique est bien plus petite que la puissance correspondant à l'intensité maximale du signal d'émission résonnante de X (3 nW) et de X^+ (0.5 nW). Nous allons voir dans la suite que le décalage énergétique de X et de X^+ est dû aux modifications de l'état de charge du défaut au voisinage de la boîte, alors que l'intensité de l'émission résonnante

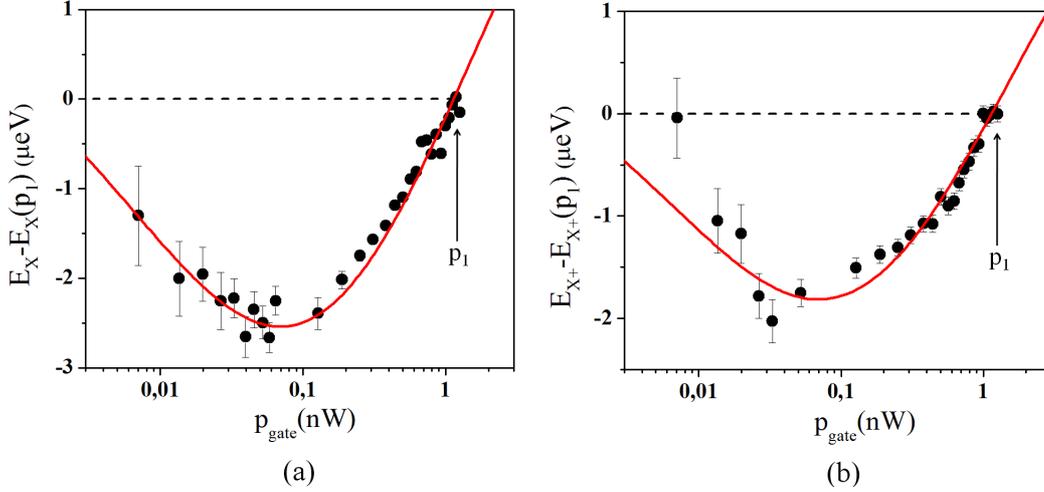


FIGURE 4.18 – *Energie de l'émission résonnante de l'exciton neutre E_X (figure a) et de l'exciton chargé E_{X^+} (figure b) à différentes puissances du gate optique. Ces données expérimentales sont extraites de la même série de mesures que pour la figure 4.15.*

dépend au contraire de l'état de charge de la boîte elle-même. Souvenons-nous qu'une fois que le gate optique est allumé, les états de charge du défaut et de la boîte quantique ne sont plus liés puisque le canal tunnel devient négligeable, comme nous l'avons discuté plus haut (voir section 4.2.1). Cela explique pourquoi les variations de E_X et E_{X^+} ne sont pas corrélées à celles de l'intensité du signal d'émission résonnante de X et X^+ .

En fait, le champ électrique créé par un trou dans le défaut au voisinage de la boîte produit un décalage énergétique Δ_X sur E_X et Δ_{X^+} sur E_{X^+} par effet Stark. Cet effet Stark provient des interactions coulombiennes dipolaire et quadripolaire entre le trou du défaut et les porteurs dans la boîte, et Δ_X et Δ_{X^+} sont évidemment très sensibles à la position relative du défaut par rapport à la boîte [99]. D'une manière générale, le décalage énergétique de l'émission résonnante de X et X^+ en fonction du nombre de trous dans le défaut est simplement donné par :

$$\begin{cases} E_X &= n_p \Delta_X + cste \\ E_{X^+} &= n_p \Delta_{X^+} + cste \end{cases} \xrightarrow{\text{stationnaire}} \begin{cases} E_X &= n_{p(st)} \Delta_X + cste \\ E_{X^+} &= n_{p(st)} \Delta_{X^+} + cste \end{cases} \quad (4.30)$$

où le nombre de trous dans le défaut en régime stationnaire $n_{p(st)}$ est donné par l'équation (4.9) :

$$n_{p(st)} = 2 - \frac{2}{1 + \frac{G+73}{V+74}} \quad (4.31)$$

Les résultats expérimentaux de la figure 4.18 sont ajustés parfaitement par

les équations (4.30) et (4.31) avec les paramètres :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boxed{\Delta_X = 7 \mu eV}, \quad \boxed{\Delta_{X^+} = 5 \mu eV} \\ \boxed{G = 1/30 \mu s^{-1}}, \quad \boxed{V = 1/60 \mu s^{-1}} \\ \boxed{\gamma_3 (\mu s^{-1}) = 1/3 p_{gate}(nW)} \\ \boxed{\gamma_4 (\mu s^{-1}) = 0.3 \sqrt{p_{gate}(nW)}} \end{array} \right. \quad (4.32)$$

Signalons à nouveau que ces estimations des paramètres $\Delta_X, \Delta_{X^+}, G, V, \gamma_3$ et γ_4 vont être réutilisées d'une manière exacte dans les autres simulations et ajustements de ce chapitre. Nous représentons sur la figure 4.19(a) la dépendance en puissance du gate optique de γ_3 et de γ_4 . La variation de l'état de charge du défaut est également présentée sur la figure 4.19(b). Nous constatons que :

- Le défaut n'est jamais vide de trou et $n_{p(st)}|_{min} \approx 1$.
- La variation du nombre de trous dans le défaut se produit principalement dans le régime des très faibles puissances du gate optique (i.e. $p_{gate} < 10 nW$)
- La *red shift* correspond à une diminution du nombre de trous dans le défaut, tandis que le *blue shift* correspond à une augmentation.

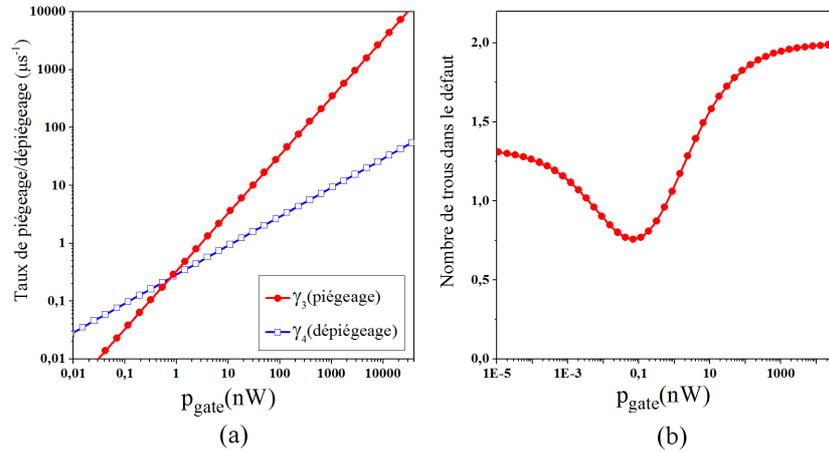


FIGURE 4.19 – (a) Dépendance en puissance du gate optique des taux de piégeage et dépiégeage de trous dans le défaut. (b) Nombre de trous dans le défaut en régime stationnaire à différentes puissances du gate optique.

Nous avons également pu mesurer les variations de E_X sur 7 ordres de grandeurs de p_{gate} . Il s'agit des données extraites de la première série de mesures

présentée dans ce chapitre (Fig.4.13(a)). Ces résultats sont tracés sur la figure 4.20 ainsi que l'ajustement théorique dont les paramètres sont donnés par (4.32). Bien que le modèle théorique reproduise parfaitement le *blue shift* à faible puissance du gate (0.2 nW \rightarrow 20 nW), il ne prévoit pas le *red shift* Δ_T observé à forte puissance ($\Delta_T \approx 3 \mu\text{eV}$ à $p_{\text{gate}} = 10 \mu\text{W}$). Cependant, ce *red shift* peut être expliqué par un échauffement local de l'échantillon dû au gate optique. En effet, Benyoucef *et al* ont mesuré un décalage de 0.7 meV de l'émission de boîtes quantiques CdTe dû à une puissance laser de 18 mW [144], ce qui correspond à $0.4 \mu\text{eV}$ à $10 \mu\text{W}$. Dans le cas de boîtes quantiques InAs/GaAs, Faraon *et al* ont mesuré également un *redshift* de 1.4 nm dû à une puissance laser de 3 mW [145], ce qui correspond à $6 \mu\text{eV}$ à $10 \mu\text{W}$. Il faut signaler que les données de Faraon *et al* correspondent à un échantillon dont le substrat est recouvert d'or afin d'augmenter les effets thermiques, mais le spot de laser utilisé pour l'échauffement est à distance de $5 \mu\text{m}$ à la boîte quantique étudiés. En plus, nous n'avons pas d'information sur l'épaisseur et la taille du spot des références [144] et [145]. Une comparaison quantitative est donc difficile, mais un *redshift* de $3 \mu\text{eV}$ à $10 \mu\text{W}$ attribué à l'échauffement par laser dans le cas de notre échantillon est raisonnable en ordre de grandeur.

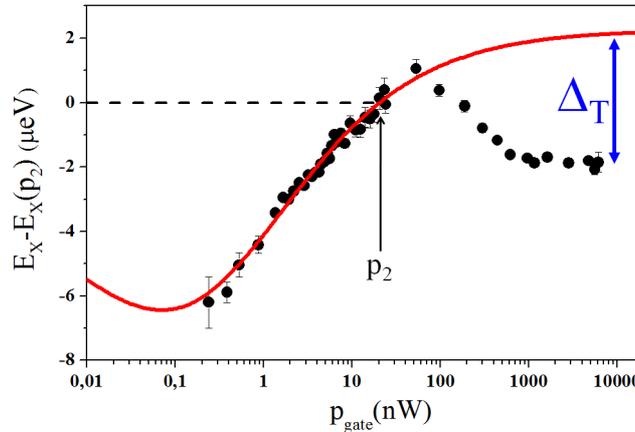


FIGURE 4.20 – *Energie de l'émission résonnante de l'exciton neutre E_X sur 7 ordres de grandeurs de puissance du gate optique. L'ajustement théorique prévoit parfaitement le blue shift à faible puissance mais pas le red shift $\Delta_T \approx 3 \mu\text{eV}$ à forte puissance du gate, probablement d'origine thermique.*

Nous commentons à présent les estimations $\Delta_X = 7 \mu\text{eV}$ et de $\Delta_{X^+} = 5 \mu\text{eV}$ obtenues à partir de la comparaison théorie/expérience ci-dessus (4.32). Ces valeurs vont nous permettre d'estimer la distance entre le défaut et la boîte quantique QD2. En effet, les calculs théoriques de l'effet Stark dû à la présence d'un trou dans la couche de mouillage réalisé par Jankovic *et al* [99] nous donnent une distance de 20 nm à 25 nm entre le défaut d'interface et la boîte quantique

(voir figure 4.21). Cette distance est suffisamment grande pour qu'il n'y ait pas de recouvrement entre les fonctions d'onde des trous du défaut et de la boîte quantique. En d'autres termes, les trous du défaut sont bien localisés. Nous remarquons aussi que cette distance est en bon accord avec la distance défaut/boîte de 18 nm estimée pour QD1 (voir section 3.2.4 du chapitre 3, page 100).

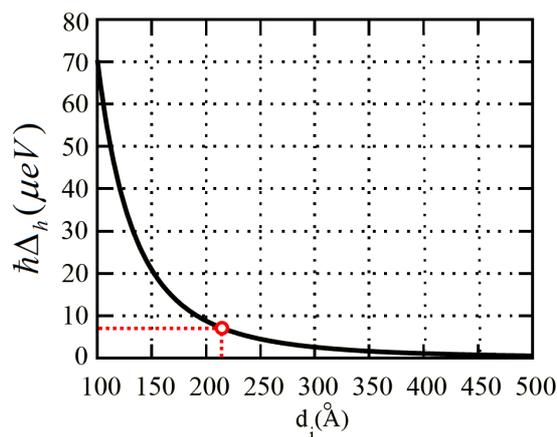


FIGURE 4.21 – Calcul théorique du décalage énergétique de l'émission d'une boîte quantique dû à la présence d'un trou dans le plan de la couche de mouillage en fonction à la distance d_i entre le trou et la boîte [99].

Enfin, après avoir discuté, dans la partie précédente, les processus de capture de porteurs dans une boîte quantique, nous pouvons comparer avec les résultats obtenus dans le cas du défaut au voisinage de la boîte. Pour le piégeage γ_3 de trous dans le défaut, comme l'énergie de confinement d'un défaut d'interface $E_c^{(\Phi)}$ est très faible, la capture de trou par effet Auger est très efficace (voir section 1.3.1.b du chapitre 1, page 36). Cela explique pourquoi le piégeage γ_3 est essentiellement dû aux processus Auger qui sont 60 fois plus efficaces que pour la capture de trous dans la boîte quantique. Pour le dépiégeage γ_4 des trous du défaut vers le continuum, nos résultats montrent qu'il est essentiellement dû aux processus assistés par phonons. Ce mécanisme doit être l'absorption de phonons acoustiques car à basse température les modes de phonon optique ne sont pas du tout peuplés [23]. Un tel échappement est très peu efficace pour les charges dans la boîte quantique, à cause des énergies de confinement qui sont trop grandes par rapport à l'énergie caractéristique des phonons acoustiques mis en jeu, de l'ordre de quelques meV. À l'inverse, l'échappement d'un trou du défaut par absorption de phonons acoustiques peut être efficace car le confinement est beaucoup plus faible dans le défaut (de l'ordre de 10 meV [146]). Cependant, nous n'arrivons pas à expliquer avec des arguments simples pourquoi le dépiégeage ne peut pas être piloté par des effets Auger, qui sont très efficaces pour la capture dans le défaut.

4.3.3 Etude de la dynamique de charges dans les phases transitoires

4.3.3.a Description des expériences

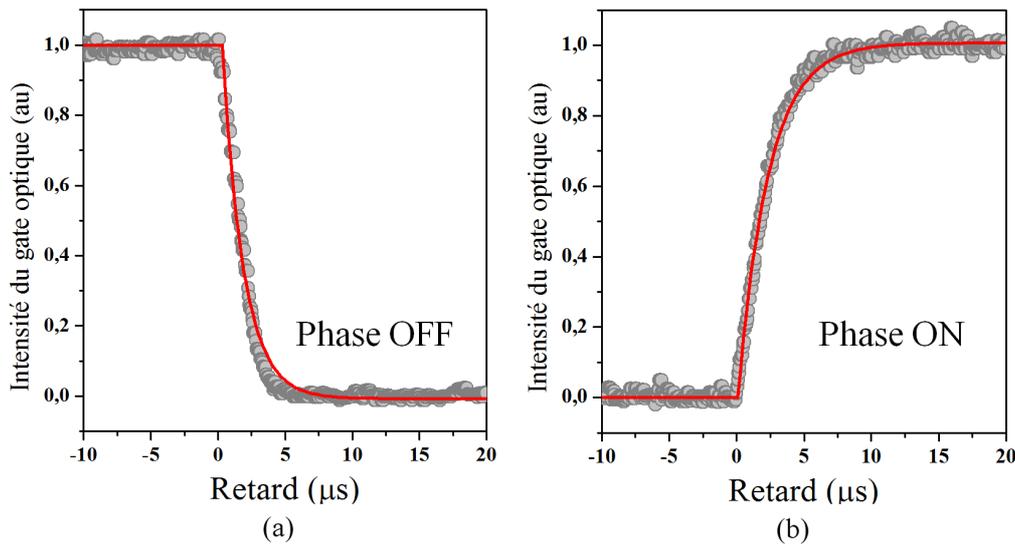


FIGURE 4.22 – Fonctions de réponse du dispositif expérimental dans la phase OFF (a) et dans la phase ON (b).

Dans les sections précédentes, nous avons étudié l'influence de la puissance du gate optique sur l'intensité et l'énergie du signal d'émission résonnante, ce qui nous a conduit à analyser respectivement, *en régime stationnaire*, l'état de charge d'une boîte quantique, et celui du défaut d'interface dans son voisinage. Dans les expériences correspondantes, le gate optique est toujours allumé et les grandeurs physiques mesurées sont des valeurs moyennes stationnaires. Dans cette section, nous allons nous intéresser à la dynamique de l'effet de gate optique et nous allons étudier les phénomènes dans les phases transitoires où le gate optique vient d'être juste allumé ou juste éteint. Ces études résolues en temps sont classées en deux phases :

1. **Phase OFF** : Evolution du système lorsque le gate optique est éteint à $t=0$, sachant que le système avec gate était en régime stationnaire à $t<0$.
2. **Phase ON** : Evolution du système lorsque le gate optique est allumé à $t=0$, sachant que le système sans gate optique était en régime stationnaire à $t<0$.

Pour réaliser ces expériences, le laser utilisé comme gate optique est modulé au cours du temps, à l'aide d'un modulateur acousto-optique, avec une modulation

créneau de type "tout ou rien"². La résolution temporelle de notre dispositif expérimental est égale à $1.7 \mu s$ dans la phase OFF et à $2 \mu s$ dans la phase ON. Cette résolution est mesurée en enregistrant la fonction de réponse de notre système dans les phases OFF et ON lorsque le détecteur mesure directement le gate optique modulé (figure 4.22).

4.3.3.b Etude de la phase OFF

Nous enregistrons plusieurs courbes d'évolution temporelle d'intensité d'émission d'exciton neutre de QD2 à 10K. Chaque courbe correspond à une énergie différente du laser d'excitation. Ensemble de courbe nous permet de construire une carte (figure 4.23(a)) dont l'abscisse est le temps et l'ordonnée est le désaccord du laser d'excitation par rapport à $E_X(t=0)$. Sur cette carte, nous constatons qu'une fois que le gate est éteint :

- L'énergie du laser correspondant à la résonance diminue. Autrement dit, il se produit un *redshift* de l'énergie de l'exciton neutre E_X . Au bout d'un temps $t_{shift} \approx 20 \mu s$, E_X atteint sa valeur limite, correspondant à un *redshift* de l'ordre de $3.5 \mu eV$.
- L'intensité du signal d'émission résonnante diminue mais très lentement par rapport à *shift* avec un temps caractéristique $t_{off} \ll t_{shift}$.

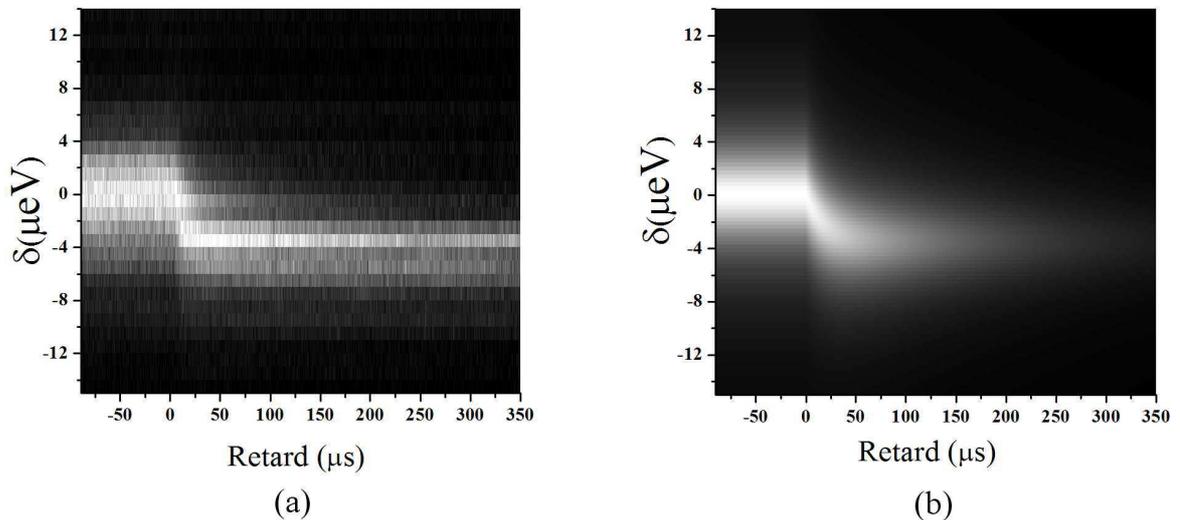


FIGURE 4.23 – (a) Evolution temporelle et spectrale du signal d'émission résonnante de l'exciton neutre lorsque le gate optique de puissance $3 nW$ est éteint à $t=0$. (b) Simulation théorique avec $t_{shift} = 20 \mu s$ et $t_{off} = 150 \mu s$.

2. La description détaillée de l'expérience est décrite dans l'annexe C.

La figure 4.23(b) présente la simulation numérique que nous avons effectuée pour reproduire les résultats de la figure 4.23(a). Les données expérimentales à $t \leq 0$ sont modélisées par une lorentzienne de largeur Γ' . Les données expérimentales à $t > 0$ sont aussi modélisées par une lorentzienne de largeur Γ' mais dont l'amplitude décroît exponentiellement avec un temps caractéristique t_{off} , et qui se décale exponentiellement jusqu'à une valeur limite Δ avec un temps caractéristique t_{shift} :

$$I(\delta, t \leq 0) = \frac{I_0}{\delta^2 + \Gamma'^2/4} \quad (4.33)$$

$$I(\delta, t > 0) = \frac{I_0 \cdot e^{-t/t_{off}}}{[\delta - \Delta(1 - e^{-t/t_{shift}})]^2 + \Gamma'^2/4} \quad (4.34)$$

Sur la figure 4.23(b), les paramètres utilisés pour reproduire phénoménologiquement nos résultats sont les suivants :

$$\begin{cases} t_{shift} = 20 \mu s \\ t_{off} = 150 \mu s \\ \Delta = 3.5 \mu eV \\ \Gamma' = 6.3 \mu eV \end{cases} \quad (4.35)$$

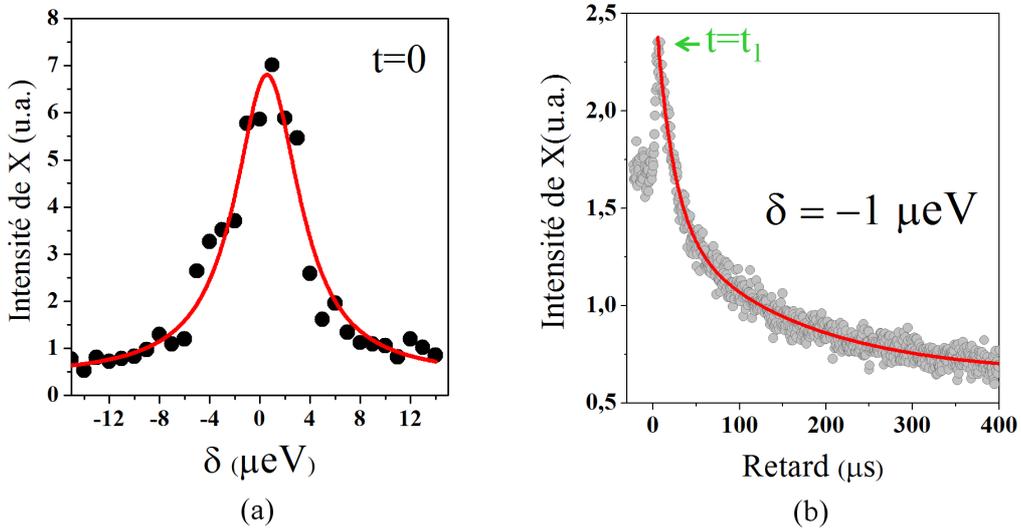


FIGURE 4.24 – (a) : La coupe verticale à $t = 0$ de la figure 4.23(a). (b) : La coupe horizontale à $\delta = -1 \mu eV$ de la figure 4.23(a).

Nous allons à présent effectuer une coupe verticale (i.e. $t = cste$) de la figure 4.23(a) pour visualiser le profil lorentzien de l'émission résonnante, et une coupe horizontale (i.e. $\delta = cste$) pour analyser plus en détail son évolution temporelle.

La figure 4.24(a) présente les données à $t = 0$ qui sont parfaitement ajustées par une lorentzienne de largeur $\Gamma' = 6.3 \mu eV$. La figure 4.24(b) présente les données à $\delta = -1 \mu eV$. Sur cette figure, nous observons deux phases :

1. $0 < t \leq t_1$: E_X se déplace vers E_{laser} en raison du désaccord négatif initialement choisi et du redshift de la raie. Par conséquent, le signal commence par augmenter puisque le laser s'approche de la condition d'excitation résonnante. A $t = t_1$, le laser est strictement en résonance avec E_X et le signal d'émission résonnante est maximal.
2. $t > t_1$: Le *redshift* continue et E_X s'éloigne de E_{laser} . Le signal diminue d'abord rapidement avec un temps caractéristique t_{shift} . Une fois que E_X atteint sa valeur limite ($t \gg t_{shift}$), le signal continue à diminuer mais très lentement avec un temps caractéristique t_{off} . La courbe d'ajustement est une double exponentielle décroissante de temps caractéristiques $t_{shift} = 20 \pm 1 \mu s$ et $t_{off} = 150 \pm 10 \mu s$.

En réalisant ces expériences pour différentes puissances du gate optique, nous avons pu étudier les variations des temps t_{shift} et t_{off} avec p_{gate} , que nous allons ensuite confronter à notre modèle théorique. Les résultats sont représentés sur la figure 4.25 où nous constatons tout d'abord que t_{shift} est quasiment constant sur toute la gamme de puissance explorée ($p_{gate} \leq 200 nW$). Pour t_{off} , nous observons que ce temps est d'abord constant pour $p_{gate} \leq 30 nW$, puis, une fois que $p_{gate} \geq 100 nW$, t_{off} augmente fortement et atteint même une valeur de 20 ms pour $p_{gate} \approx 200 nW$. En résumé, nous avons :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boxed{t_{shift} \approx 20 \mu s} \quad \text{pour } p_{gate} < 200 nW \\ \boxed{t_{off} \approx 120 \mu s} \quad \text{pour } p_{gate} < 30 nW \end{array} \right. \quad (4.36)$$

Nous allons maintenant interpréter les résultats ci-dessus dans le cadre de notre modèle théorique. Pour cela, nous commençons par une discussion qualitative des effets mis en jeu avant d'en réaliser une exploitation quantitative. Lorsque le gate optique est éteint, les porteurs photo-crées par le gate dans la barrière relaxent par deux canaux : recombinaison radiative de paires électron-trou et relaxation non-radiative vers les boîtes quantiques et les défauts. Nous avons vu dans la section 1.3.1 du chapitre 1 (page 34) que le deuxième canal est beaucoup moins efficace que le premier. Considérons alors le cas d'une puissance de gate initiale très faible. Dans cette configuration, la barrière se vide quasi-instantanément par recombinaison radiative de paires électron-trou après que le gate optique est éteint, c'est-à-dire sans modification de l'état de charge de la boîte quantique ou du défaut :

$$\left\{ \begin{array}{l} N_e(t = 0^+) = 0 \\ N_h(t = 0^+) = 0 \end{array} \right. \quad \text{et} \quad \left\{ \begin{array}{l} n_p(0^+) = n_p(0^-) \\ n_e(0^+) = n_e(0^-) \\ n_h(0^+) = n_h(0^-) \end{array} \right. \quad (4.37)$$

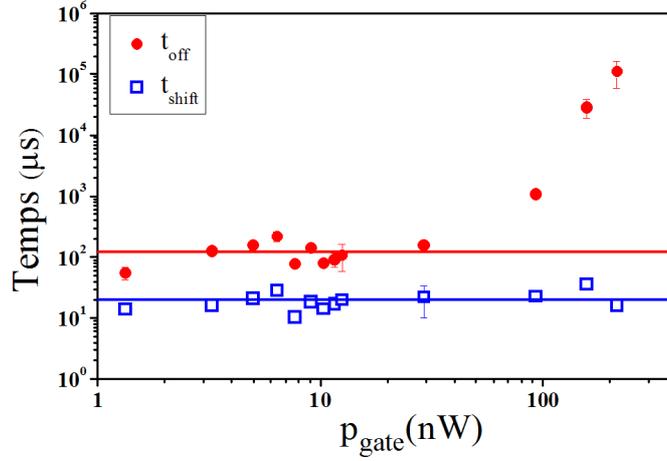


FIGURE 4.25 – Variations des temps caractéristiques t_{shift} et t_{off} en fonction de la puissance du gate optique initiale.

L'évolution de l'état de charge de la boîte et du défaut aux temps positifs $t > 0$ peut alors être décrite de la manière suivante :

- **Le défaut** : Le défaut revient à son état stationnaire sans gate optique, caractérisé par $n_p(st) = \frac{2G}{(G+V)}$ où G et V sont les taux de piégeage et dépiégeage (nous avons négligé γ_{in} et γ_{out} par rapport à G et V). A partir de l'équation (4.5), nous obtenons l'équation différentielle satisfaite par n_p :

$$\begin{aligned} \frac{dn_p}{dt} &\approx -(G+V)n_p + 2G \\ \Rightarrow n_p(t) &\approx \left(n_p(0) - \frac{2G}{G+V} \right) e^{-(G+V)t} + \frac{2G}{G+V} \end{aligned} \quad (4.38)$$

Par ailleurs, à partir de l'équation (4.30) discutée dans la partie consacrée à l'étude du décalage énergétique en régime stationnaire, nous déduisons que $E_X(t) = n_p(t)\Delta_X + cste$. L'énergie de l'exciton neutre E_X varie au cours du temps en suivant une loi exponentielle décroissante de temps caractéristique $t_{shift} = (G+V)^{-1}$. Ce décalage peut être un *redshift* ou *blueshift* en fonction de la puissance du gate initiale. En effet, d'après la figure 4.20, l'énergie d'exciton neutre a un décalage *redshift* par rapport à sa valeur sans gate optique si $p_{gate} < 0.5 \text{ nW}$, et un décalage *blueshift* si $p_{gate} > 0.5 \text{ nW}$. C'est à dire que dans l'expérience de phase OFF, nous avons un *blueshift* si $p_{gate} < 0.5 \text{ nW}$, et un *redshift* si $p_{gate} > 0.5 \text{ nW}$.

- **La boîte quantique** : La boîte quantique revient aussi à son état stationnaire sans gate optique, caractérisé par $n_h(st) \approx 2$. Le rechargement de la boîte en trous est assuré par le canal tunnel boîte/défaut, qui n'est

maintenant plus négligeable puisqu'il n'y a plus de charges dans la barrière. Comme $\gamma_{in}, \gamma_{out} \ll G, V$, la capture de trou dans la boîte est beaucoup plus lente que le retour à l'équilibre du défaut. Par conséquent, nous pouvons considérer que le nombre de trous dans le défaut est déjà revenu à $n_{p(st)}$ lorsque le nombre de trous dans la boîte commence augmenter. En tenant compte en plus du fait que $\gamma_{in} \gg \gamma_{out}$, l'équation (4.6) se simplifie en :

$$\begin{aligned} \frac{dn_h}{dt} &\approx \gamma_{in}(2 - n_h)n_{p(st)} \\ \Rightarrow n_h(t) &= 2 - (2 - n_h(0)) e^{-\gamma_{in}n_{p(st)}t} \end{aligned} \quad (4.39)$$

Le rechargement de la boîte en trous se fait avec un taux $\gamma_{in}n_{p(st)}$, qui détermine le temps $t_{off} = (\gamma_{in}n_{p(st)})^{-1}$ caractéristique de la décroissance de l'intensité du signal d'émission résonnante dans la phase OFF.

En résumé, si le gate optique a une puissance initiale très faible, les temps t_{shift} et t_{off} sont donnés par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \boxed{t_{shift} = \frac{1}{G + V}} \\ \boxed{t_{off} = \frac{1}{\gamma_{in}} \frac{G + V}{2G}} \end{array} \right. \quad (4.40)$$

Les valeurs $G = \frac{1}{30} \mu s^{-1}$ et $V = \frac{1}{60} \mu s^{-1}$ utilisées pour les ajustements de la section 4.3.2 donne $t_{shift} = 20 \mu s$, en excellent accord avec nos résultats sur la phase OFF. A partir de la valeur $t_{off} \approx 120 \mu s$ déterminée à faible puissance du gate optique, nous pouvons à présent estimer le taux de capture du défaut vers la boîte $\boxed{\gamma_{in} \approx 1/160 \mu s^{-1}}$.

Avant de passer à l'étude de la phase ON, il nous reste à commenter qualitativement le cas des fortes puissances de gate initiales. A l'inverse de la discussion précédente, le nombre de porteurs dans la barrière à $t = 0$ peut être très grand dans la mesure où la recombinaison radiative ne suffit plus à vider la barrière. Une telle hypothèse nécessite une augmentation du temps de vie radiatif des porteurs dans la barrière GaAs. Ces porteurs continuent ainsi à modifier l'état de charge de la boîte et du défaut une fois le gate optique éteint, ce qui revient à maintenir les taux γ_1 et γ_2 non nuls à $t > 0$. Le signal d'émission résonnante peut subsister plus longtemps que le temps $t_{off} \approx 120 \mu s$ déterminé à basse puissance, expliquant ainsi l'augmentation de t_{off} à forte puissance du gate optique. Cependant, les résultats expérimentaux de R. Eccleston *et al* [147], et de H. C. Casey *et al* [148] montrent que le temps de vie radiatif de l'exciton massif GaAs diminue dans le cas de forte densité de porteurs. Il faut trouver alors une autre explication pour l'augmentation de t_{off} à forte puissance du gate optique.

4.3.3.c Etude de la phase ON

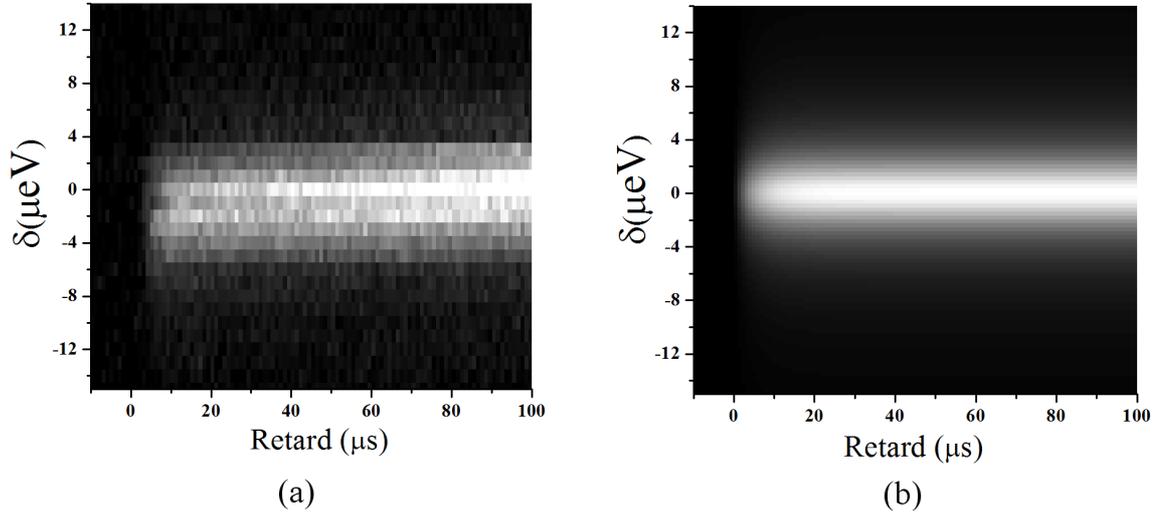


FIGURE 4.26 – (a) : Evolution temporelle et spectrale du signal d'émission résonnante de l'exciton neutre lorsque le gate optique de puissance 10 nW est allumé à $t=0$. (b) : Simulation théorique avec $t_{on} = 5 \mu s$.

Nous effectuons les mêmes séries de mesure que pour la phase OFF afin de construire une carte de l'évolution temporelle et spectrale du signal d'émission résonnante de X à la même puissance de 10 nW du gate optique (figure 4.26(a)). L'abscisse est le temps et l'ordonnée est le désaccord du laser d'excitation par rapport à $E_X(t = 100 \mu s)$. Nous constatons que :

- Pour $t < 0$: Le signal détecté est négligeable car le gate optique est éteint.
- Pour $t > 0$: Le signal augmente très rapidement dès que le gate optique est allumé. Aucun phénomène de décalage de E_X n'est mesuré.

La simulation théorique des données précédentes est représentée sur la figure 4.26(b). Nous modélisons le signal détecté à $t > 0$ par une lorentzienne dont la largeur vaut Γ' et dont l'amplitude augmente exponentiellement avec un temps caractéristique t_{on} :

$$I(\delta, t \leq 0) = 0 \quad (4.41)$$

$$I(\delta, t > 0) = \frac{I_1(1 - e^{-t/t_{on}})}{\delta^2 + \Gamma'^2/4} \quad (4.42)$$

Les paramètres utilisés pour reproduire phénoménologiquement nos résultats sont les suivants :

$$\begin{cases} t_{on} &= 5 \mu s \\ \Gamma' &= 4.8 \mu eV \end{cases} \quad (4.43)$$

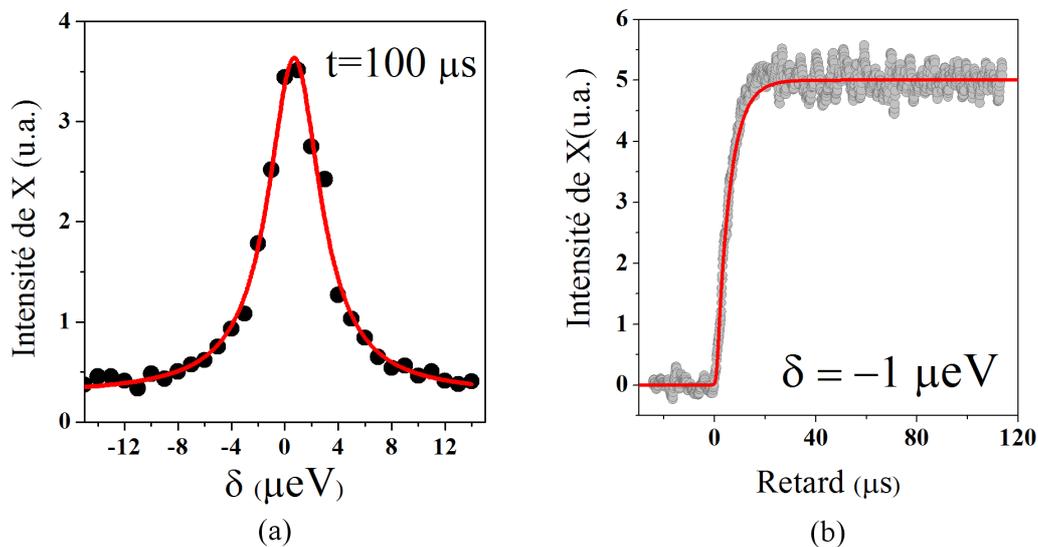


FIGURE 4.27 – (a) : La coupe verticale à $t = 100 \mu s$ de la figure 4.26(a). (b) : La coupe horizontale à $\delta = -1 \mu eV$ de la figure 4.26(a).

Comme pour la phase OFF, nous allons considérer une coupe verticale de la figure 4.26(a) à $t = 100 \mu s$ pour visualiser le profil lorentzien, et une coupe horizontale à $\delta = -1 \mu eV$ pour analyser l'évolution temporelle. Les données de la figure 4.27(a) sont parfaitement ajustées par une lorentzienne de largeur $\Gamma' = 4.8 \mu eV$. Les données à $t > 0$ de la figure 4.24(b) sont aussi parfaitement ajustées par la convolution d'une exponentielle croissante de temps caractéristique $t_{on} = 5.1 \pm 0.2 \mu s$ avec la fonction de réponse du système de temps de montée $2 \mu s$. Sur ces deux coupes, nous remarquons que :

- La largeur Γ' mesurée dans la phase ON n'est pas la même que celle mesurée dans la phase OFF. En fait, ces études sont effectuées pendant une longue journée de travail et il est possible que le couplage entre la diode laser et la fibre optique ait légèrement changé entre les deux études, induisant une dérive de la puissance effective d'excitation, qui se traduit par une modification de Γ' (i.e. $\Gamma' = \Gamma \sqrt{1 + \frac{p_{laser}}{p_0}}$ d'après l'équation (3.67) du chapitre 3, page 96) .
- Un seul temps est mesuré et nous n'avons aucune signature d'un phénomène de décalage énergétique, même s'il doit exister puisque l'état de charge du défaut est a priori modifié une fois que le gate optique est allumé. En fait, lorsque le gate optique est allumé, la variation de l'état de charge du défaut est majoritairement due aux processus (3) et (4) de capture/échappement de temps caractéristiques $\gamma_3^{-1} \sim 0.1 \mu s$ et $\gamma_4^{-1} \sim 1 \mu s$ à $p_{gate} = 10 nW$ (d'après des résultats (4.32)). Il est alors cohérent de ne pas observer de phénomène de décalage énergétique avec une résolution temporelle de $2 \mu s$.

Nous passons à présent aux variations de t_{on} avec la puissance du gate optique, présentées sur la figure 4.28. Nous constatons tout d'abord que t_{on} n'est pas constant, contrairement à la phase OFF où les temps mesurés sont quasiment constants à faible puissance. En effet, l'apparition du signal d'émission résonnante avec le gate optique est liée aux processus de capture (1) et (2) de taux γ_1 et γ_2 , que nous avons discutés dans la section 4.2 de ce chapitre. De fait, nous anticipons que le temps caractéristique t_{on} va fortement dépendre des valeurs de γ_1 et γ_2 , qui varient avec p_{gate} .

La résolution numérique du système linéaire différentiel du modèle MPA nous permet tout d'abord de déterminer le lien entre t_{on} et γ_1, γ_2 et nous trouvons $t_{on} = \frac{3}{2(\gamma_1 + \gamma_2)}$. En utilisant par ailleurs les lois de puissances de γ_1 et γ_2 données par les équations (4.26) de la page 136, nous obtenons la variation de t_{on} avec la puissance du gate :

$$t_{on} = \frac{3}{2(\gamma_1 + \gamma_2)} \quad (4.44)$$

$$\Rightarrow \boxed{t_{on(\mu s)}^{-1} = 0.04\sqrt{p_{gate(nW)}} + 0.03 p_{gate(nW)}} \quad (4.45)$$

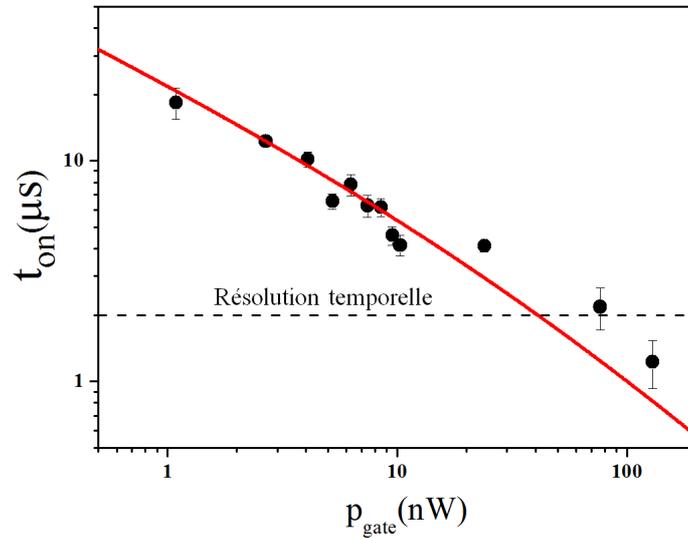


FIGURE 4.28 – Variations du temps caractéristique t_{on} en fonction de la puissance du gate optique. L'ajustement théorique est réalisé à partir de la résolution du modèle MPA, et des lois de puissance déterminées pour γ_1 et γ_2 dans la section 4.3.1.c.

Nous constatons sur la figure 4.28 que la relation ci-dessus ajuste parfaitement nos données expérimentales pour t_{on} , ce qui donne beaucoup de poids à notre modèle théorique. Même s'il existe initialement de nombreux paramètres ajustables

dans notre modèle, force est de constater que notre modélisation rend compte de nos multiples caractérisations de l'effet de gate optique, à savoir intensité et énergie de l'émission résonnante en fonction de la puissance du gate en régimes stationnaire et transitoire. Nous allons présenter dans la prochaine section un autre type d'expériences qui vont là-encore corroborer notre modélisation.

4.3.4 Auto-corrélation de photons

4.3.4.a Résultats expérimentaux

Pour étudier la statistique des photons du signal d'émission résonnante de l'exciton neutre, nous avons réalisé des mesures d'auto-corrélation de photons en fonction de la puissance du gate optique. Ces expériences sont effectuées pour la boîte quantique QD2, excitée à la résonance, en régime stationnaire, et pour des puissances du gate optique couvrant la gamme ($p_{gate} = 20 \text{ nW} \rightarrow 200 \text{ nW}$). Les données brutes de 4 mesures (parmi une série complète de 12 mesures) sont présentées sur la figure 4.29 avec l'ajustement théorique par le modèle MPA. Même si la fenêtre temporelle a une largeur de 350 ns qui est habituellement très grande pour des expériences de corrélation de photons dans des boîtes quantiques InAs/GaAs [7, 149, 150], elle n'est cependant pas assez large pour observer la valeur limite du nombre de coïncidences aux temps longs. Une normalisation des données devient délicate. Afin de pallier à ce problème, nous avons tracé les données expérimentales brutes en indiquant le nombre de coïncidences en fonction du retard, et nous avons ajusté les maxima des courbes expérimentale et théorique sur une double échelle.

Sur ces résultats, nous observons systématiquement un *antibunching* à retard zéro. Cet *antibunching* confirme que le signal détecté est bien associé à l'émission de photons uniques par la boîte quantique. Sur tous les spectres, il y a par ailleurs un *bunching* très marqué, allant jusqu'à des valeurs de $g^{(2)}$ de 8 pour $p_{gate} = 145 \text{ nW}$. Nous constatons aussi que le temps caractéristique τ_B de décroissance du *bunching* est très long par rapport au temps de vie radiatif d'une boîte quantique, puisque $\tau_B(145 \text{ nW}) \sim 0.1 \mu\text{s}$ tandis que $T_1 \sim 1 \text{ ns}$. En fait, la fonction $g^{(2)}(\tau)$ reflète la dynamique de la population de l'état excitonique, caractérisée par la probabilité P_{1h-1e} . Cette dynamique est pilotée non seulement par la recombinaison radiative de temps caractéristique T_1 mais aussi par les processus de capture qui se déroulent sur des temps très longs γ_1^{-1} et γ_2^{-1} . Comme nous allons le voir ci-dessous, le phénomène de *bunching* observé provient des processus de capture des porteurs photo-crés par le gate optique dans la barrière. Par conséquent, le temps caractéristique τ_B donne l'ordre de grandeur de γ_1^{-1} et de γ_2^{-1} , d'où les valeurs de τ_B allant jusqu'à quelques centaines de ns.

Avant d'aller plus loin dans l'explication phénoménologique de nos résultats,

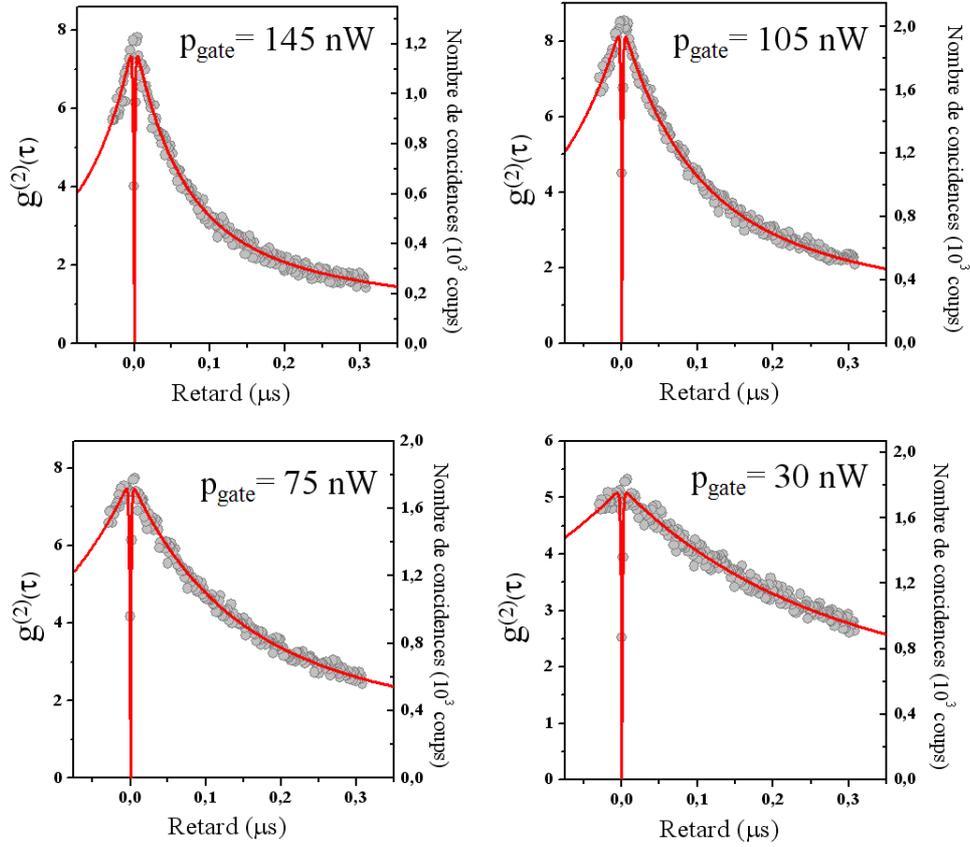


FIGURE 4.29 – Mesures d’auto-corrélation d’intensité de l’émission résonnante de l’exciton neutre dans QD2 pour 4 puissances du gate optique (la série complète porte sur 12 mesures). Les données expérimentales indiquent le nombre de coïncidences en fonction du retard tandis que les courbes théoriques calculées avec le modèle MPA sont tracées en double échelle en ajustant les maxima expérimental et théorique. Les paramètres utilisés dans le modèle MPA sont $\gamma = 3030 \mu s^{-1}$, $r_X = 500 \mu s^{-1}$ tandis que γ_1 et γ_2 suivent les lois de puissance utilisées dans la figure 4.30.

nous décrivons la procédure d’ajustement de nos données expérimentales à l’aide du modèle MPA. En effet, d’après l’équation (2.12) du chapitre 2 (page 60), nous avons :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{P_{1_h-1_e}(\tau)}{P_{1_h-1_e}(st)} \Bigg|_{P_{0_h-0_e}(0)=1} \quad (4.46)$$

où la probabilité $P_{1_h-1_e}(\tau)$ est calculée par résolution du modèle MPA, avec les paramètres :

$$\begin{cases} r_X = 500 \mu s^{-1} \\ r_{X+} = 0 \end{cases} \quad (4.47)$$

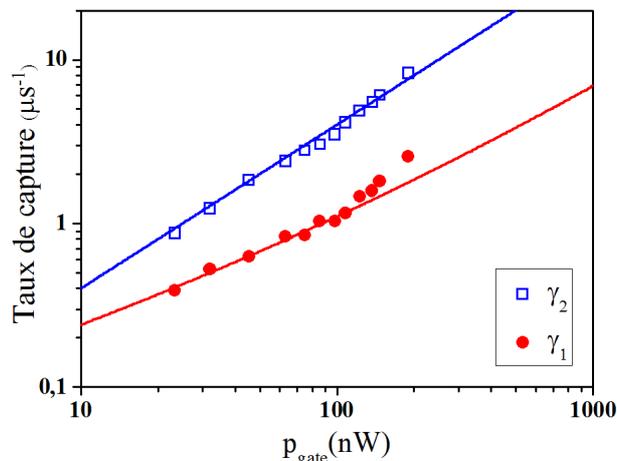


FIGURE 4.30 – Symboles : valeurs de γ_1 et γ_2 extraites des ajustements théoriques des mesures d’auto-corrélation dans QD2. Ces valeurs correspondent parfaitement aux lois de puissance (Eq.4.26) utilisées dans la section 4.3.1.c et qui sont indiquées en traits pleins.

Comme précédemment, le taux de recombinaison radiative est $\gamma = 3030 \mu\text{s}^{-1}$; pour γ_1 et γ_2 , nous avons choisi de ne pas prendre les valeurs données par les lois de puissance (Eq.4.26) mais nous les avons laissé libres pour obtenir les meilleurs fits, comme sur la figure 4.29. Nous constatons sur la figure 4.34 que les paramètres γ_1 et γ_2 utilisés pour ces ajustements sont bien en parfait accord avec les lois de puissance précédentes (Eq.4.26).

4.3.4.b Statistique des photons d’émission résonnante

Dans le régime de très faible puissance du gate optique (où $\gamma_1, \gamma_2 \ll \gamma$), les photons émis ne proviennent que de l’émission résonnante car la photoluminescence non-résonnante excitée par le gate optique est négligeable. Cependant, le laser résonnant ne peut exciter la boîte quantique que si cette dernière est dans l’état fondamental vide de charge. Alors, la statistique des photons émis est fortement liée à l’état de charge de la boîte quantique. Comme nous en avons discuté dans le modèle théorique, l’état de charge d’une boîte quantique fluctue dans le temps à cause des processus de capture de charge (1) et (2) d’efficacités γ_1 et γ_2 . Cette fluctuation est décrite complètement par le modèle MPA avec 9 possibilités d’états de charge de la boîte. Cependant, en partant de l’état vide de la boîte, nous pouvons interpréter cette fluctuation de la manière phénoménologique suivante (figure 4.31) :

- Lorsque la boîte quantique se trouve dans l’état vide $|0_h 0_e\rangle$ qui est l’état fondamental $|g\rangle$ de l’exciton neutre, elle ne reste dans cet état que pendant

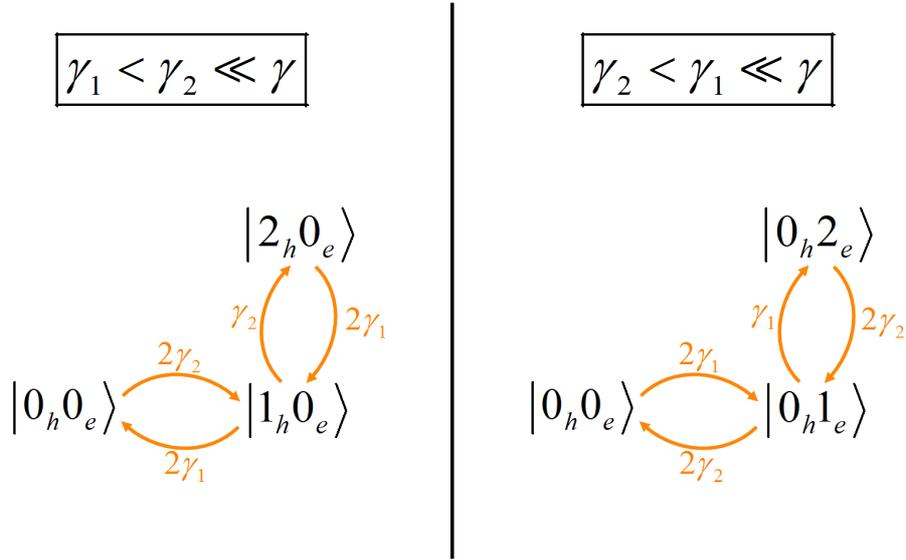


FIGURE 4.31 – Fluctuation de l'état de charge d'une boîte quantique sous l'effet du gate optique dans le régime de très faible puissance du gate.

une durée τ_{\uparrow} . Au bout d'un temps τ_{\uparrow} , la boîte évolue vers un de ses états chargés $\{|c\rangle\}$. Dans la limite des très faibles puissances du gate optique, $|c\rangle$ est soit le vide de trous et un excès d'électrons (si $\gamma_1 > \gamma_2$), soit le vide d'électron et un excès de trous (si $\gamma_1 < \gamma_2$). En conséquence, nous avons :

$$\{|c\rangle\} = \begin{cases} \{|0_h 1_e\rangle, |0_h 2_e\rangle\} & \text{si } \gamma_2 < \gamma_1 \ll \gamma \\ \{|2_h 0_e\rangle, |1_h 0_e\rangle\} & \text{si } \gamma_1 < \gamma_2 \ll \gamma \end{cases} \quad (4.48)$$

A partir des schémas présentés sur la figure 4.31, nous trouvons qu'en première approximation :

$$\tau_{\uparrow}^{-1} \approx \begin{cases} 2\gamma_1 & \text{si } \gamma_2 < \gamma_1 \ll \gamma \\ 2\gamma_2 & \text{si } \gamma_1 < \gamma_2 \ll \gamma \end{cases} \quad (4.49)$$

- La boîte reste dans un état chargé $\{|c\rangle\}$ pendant une durée τ_{\downarrow} (pendant lequel elle peut passer d'un état chargé à un autre). Au bout d'un temps τ_{\downarrow} , la boîte revient dans son état fondamental $|0_h 0_e\rangle$. Comme dans le régime des très faibles puissances, la disparition d'un trou (électron) provient de la capture lente d'un électron (trou) suivie de leur recombinaison radiative rapide (voir la page 129), nous en déduisons que le temps τ_{\downarrow} est approximativement donné par :

$$\tau_{\downarrow}^{-1} \approx \begin{cases} 2\gamma_2 & \text{si } \gamma_2 < \gamma_1 \ll \gamma \\ 2\gamma_1 & \text{si } \gamma_1 < \gamma_2 \ll \gamma \end{cases} \quad (4.50)$$

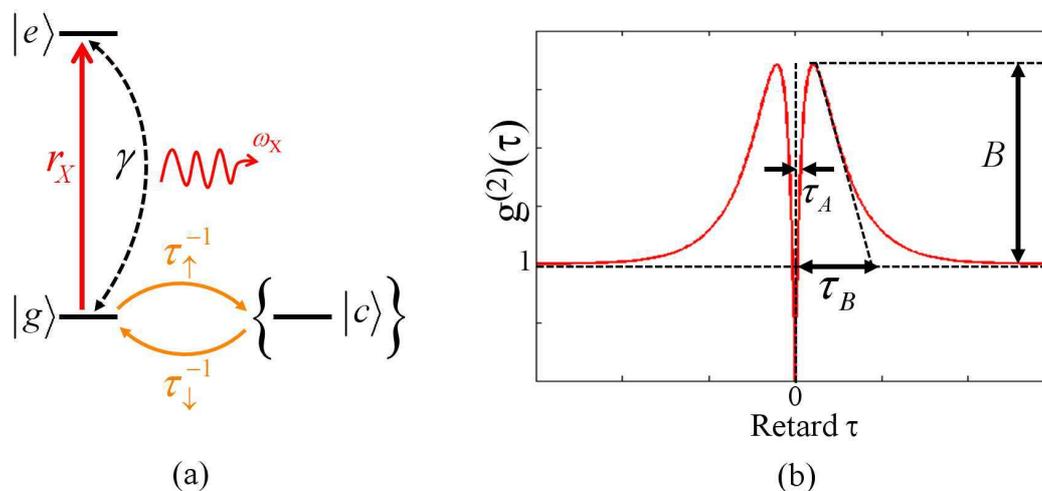


FIGURE 4.32 – (a) Fluctuation de l'état de charge d'une boîte quantique et son émission résonnante en présence à la fois du laser résonant et du gate optique. (b) Allure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux de l'émission résonnante de l'exciton neutre.

La fluctuation de l'état de charge d'une boîte quantique sous l'effet du gate à très faible puissance étant expliquée, examinons comment cet état de charge est sondé par le laser résonant de taux pompage optique r_X . Sous excitation résonnante, la boîte est pompée dans son état excité $|e\rangle$ dès qu'elle se trouve dans son état fondamental $|g\rangle$ (voir figure 4.32(a)). Une fois excitée dans l'état $|e\rangle$, la boîte quantique émet un photon et se retrouve dans l'état $|g\rangle$. Ce cycle se répète pendant une durée caractéristique τ_\uparrow , au bout de laquelle la boîte passe dans un état chargé $\{|c\rangle\}$, et le laser résonant ne peut alors plus exciter la boîte. Il n'y a plus d'émission de photons uniques, et ce pendant un temps τ_\downarrow où la boîte reste dans un état chargé. Au bout de τ_\downarrow , la boîte revient à $|g\rangle$ et le laser résonant reprend son rôle de pompage. Par conséquent, la boîte émet des photons par paquets (voir figure 4.33), dont la statistique est gouvernée par la dynamique $|g\rangle \rightleftharpoons \{|c_i\rangle\}$. Nous remarquons que les intervalles de temps caractéristiques du groupement en paquets sont très longs par rapport au temps de vie radiatif dans la boîte quantique car $\gamma \gg \gamma_1, \gamma_2$. Cette phénoménologie correspond à un effet de *blinking* de l'émission résonnante, qui est très similaire à celui observé pour la photoluminescence non-résonnante dans les boîtes quantiques et les nanocristaux.

4.3.4.c Allure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux

La boîte quantique sous excitation résonnante contrôlée par le gate optique est une source de photons uniques. La fonction $g^{(2)}(\tau)$ possède toujours un minimum à retard zéro, signature de l'effet d'*antibunching*. D'autre part, les photons sont



FIGURE 4.33 – Représentation schématique de la statistique de l'émission de photons dans une boîte quantique excitée en résonance : les photons sont émis par paquets, qui correspondent au temps où la boîte est neutre.

émis par paquets sur des échelles de temps grandes devant le temps de vie radiatif, comme en atteste la forte probabilité d'avoir deux photons pour un retard τ de l'ordre du temps de *bunching* τ_B , qui détermine la dynamique des paquets de photons uniques. Il est possible de montrer que [151, 152] ce temps de bunching est donné par l'expression simple :

$$\frac{1}{\tau_B} = \frac{1}{\tau_{\uparrow}} + \frac{1}{\tau_{\downarrow}} \quad (4.51)$$

$$\Rightarrow \boxed{\tau_B^{-1} \approx 2(\gamma_1 + \gamma_2)}$$

De fait, si nous ajustons la décroissance du signal de *bunching* (figure 4.32(b)) par une exponentielle décroissante de temps caractéristique τ_B , nous obtenons les valeurs indiquées sur la figure 4.34(a). Nous constatons que ces valeurs sont en très bon accord avec l'expression $2(\gamma_1 + \gamma_2)$, où γ_1 et γ_2 sont donnés par les lois de puissance déterminées précédemment (Eq.4.26). La relation entre τ_B et γ_1, γ_2 confirme que l'effet de *bunching* est bien contrôlé par les processus de capture dans la boîte quantique des porteurs photo-crées par le gate optique dans la barrière.

Par ailleurs, nous déduisons de notre analyse ci-dessus que plus le rapport $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow}$ est grand, et plus les paquets de photons uniques sont courts par rapport aux intervalles de temps où la boîte est éteinte (figure 4.33), mais également plus grande est la probabilité d'avoir deux photons du même paquet. Ainsi, l'amplitude du bunching B (figure 4.32(b)) est une fonction croissante du rapport $\tau_{\downarrow}/\tau_{\uparrow}$ [152].

Enfin, en ce qui concerne l'*antibunching*, l'ouverture temporelle de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ au voisinage du retard zéro (figure 4.32(b)) est donnée par le retard entre deux photons uniques émis consécutivement dans le même paquet. Il s'agit dans ce cas de la durée caractéristique d'un cycle radiatif $|g\rangle \xrightarrow{r_X} |e\rangle \xrightarrow{\gamma} |g\rangle$, de sorte que le temps d'*antibunching* τ_A (figure 4.32(b)) est en première approximation donné par l'expression [152] :

$$\boxed{\tau_A^{-1} \approx r_X + \gamma} \quad (4.52)$$

Avec $\gamma = 3030 \mu s^{-1}$ et $r_X = 500 \mu s^{-1}$, nous estimons que $\tau_A \approx 290 ps$. Cependant, la résolution temporelle des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ de la figure 4.29 est égale à $1.37 ns^3$, qui est beaucoup plus grande que $290 ps$. Cela explique pourquoi nous

3. Nous avons 256 points sur une fenêtre de 350 ns.

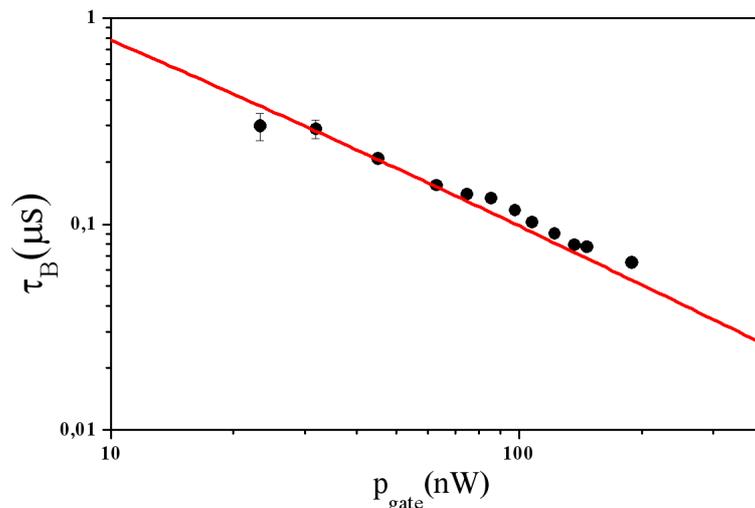


FIGURE 4.34 – Temps caractéristique τ_B de décroissance du signal de bunching : données expérimentales (symboles), et courbe théorique (trait plein) donnée par la relation $2(\gamma_1 + \gamma_2)$.

n'obtenons pas les "antibunchings" expérimentaux qui descend à zéro comme la courbe théorique.

En conclusion, les mesures de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux $g^{(2)}(\tau)$ nous ont permis d'établir le lien entre l'effet de bunching observé et les processus de capture dans la boîte quantique des porteurs photocréés dans la barrière par le gate optique. Nous avons établi que, dans le régime de très faible puissance du gate optique, l'émission de photons uniques dans la boîte quantique sous excitation résonnante se produit par paquets, dont la durée est donnée par $\tau_{\uparrow} \approx \frac{1}{\max(2\gamma_1, 2\gamma_2)}$, tandis que l'intervalle de temps entre les paquets est $\tau_{\downarrow} \approx \frac{1}{\min(2\gamma_1, 2\gamma_2)}$. Il s'agit de temps très longs par rapport au temps de vie radiatif dans la boîte quantique. Nous concluons de notre analyse qu'il se produit un phénomène de *blinking*, similaire à celui observé dans les boîtes quantiques et les nanocristaux sous excitation non-résonnante. Bien que des effets de *bunching* très lents aient été observés par Santori [153] dans des boîtes quantiques InGaAs, ce résultat correspondait au cas de la photoluminescence non-résonnante avec un effet de diffusion spectrale en plus du blinking. Dans notre cas, nous avons un effet de *blinking* "tout ou rien", sans diffusion spectrale de l'exciton neutre. En plus, comme nous allons le montrer dans la dernière partie de ce chapitre, les photons émis dans notre cas peuvent être qualifiés d'ultra-cohérents, à très faible puissance d'excitation résonnante. Ainsi, le gate optique contrôle certes une émission résonnante, mais qui est en plus ultra-cohérente.

4.4 Retour vers le système à deux niveaux

4.4.1 Préambule

Jusqu'à maintenant, nous avons décrit la boîte quantique sous excitation résonnante avec un gate optique dans le cadre d'un modèle assez compliqué (i.e. le modèle MPA avec 9 états de charge). Cependant, comme nous en avons discuté dans la partie précédente, pendant la durée τ_{\uparrow} de l'ordre de quelques centaines de nanosecondes où le laser résonnant déclenche l'émission résonnante de l'exciton neutre, seulement deux états $|g\rangle = |0_h 0_e\rangle$ et $|e\rangle = |1_h 1_e\rangle$ sont concernés. Ainsi, à très faible puissance du gate optique, les photons uniques sont émis par paquets dans un mode "tout ou rien" :

- Pendant la durée τ_{\uparrow} : émission résonnante d'un système à deux niveaux,
- Pendant la durée τ_{\downarrow} : pas d'émission résonnante.

Par conséquent, même si nous avons un système complexe à multiples états de charge, l'émission résonnante de la boîte quantique à très faible puissance du gate optique est assimilable à l'émission d'un système à deux niveaux.

Par ailleurs, nous avons vu qu'en régime d'excitation continue du gate optique, le signal d'émission résonnante a une intensité maximale lorsque le rapport $\frac{\tau_{\uparrow}}{\tau_{\downarrow}}$ est égal à 1, ce qui est équivalent à $\gamma_1 = \gamma_2$. Cette situation est atteinte dans le régime des faibles puissances du gate où le système est bien décrit dans l'approximation du modèle poissonien, et où l'image d'une capture lente des porteurs un par un complète bien notre interprétation ci-dessus en terme de fonctionnement "tout ou rien".

Les résultats expérimentaux présentés dans la suite de cette partie ont tous été enregistrés pour une puissance du gate optique constante $p_{gate} \approx 3 \text{ nW}$, qui correspond à $\tau_{\uparrow} \approx \tau_{\downarrow} \approx 5 \mu\text{s}$.

4.4.2 Mesures du temps de vie radiatif

Les mesures du temps de vie radiatif T_1 de l'exciton neutre dans QD2 sont présentées sur la figure 4.35(a,b) où nous excitons la boîte quantique respectivement en excitation non-résonnante ($\lambda_{laser} = 870 \text{ nm}$), et strictement résonnante ($\lambda_{laser} = \lambda_X = 973.6 \text{ nm}$) avec le gate optique. Ces résultats sont ajustés par une double exponentielle décroissante avec une composante majoritaire de faible temps de déclin attribué au temps T_1 , et une composante faible de grand temps de déclin de l'ordre de 1.2 ns attribuée à la fonction de réponse de notre photodiode Id-quantique (ce temps de 1.2 ns est bien caractérisé dans la section 2.6.3 du chapitre 2 (figure 2.18, page 72)). Dans les deux configurations d'excitation,

nos ajustements nous conduisent aux estimations suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_{1(non-res)} = 606 \pm 43 \text{ ps} \\ T_{1(res)} = 331 \pm 16 \text{ ps} \end{array} \right. \quad (4.53)$$

Nous remarquons que le temps de vie radiatif diminue d'un facteur 1.8 lorsque la boîte quantique QD2 est sous excitation résonnante. Il s'agit du même phénomène que celui décrit dans le chapitre 3 pour la boîte quantique QD1 (page 98). Rappelons que sous excitation non-résonnante, beaucoup de charges photo-crées dans la barrière sont ensuite capturées dans les pièges au voisinage de la boîte quantique. C'est probablement le champ électrique statique latéral créé par ces charges qui diminue le recouvrement des fonctions d'onde de l'électron et du trou. En conséquence, la probabilité de recombinaison radiative en excitation non-résonnante est plus faible qu'en excitation résonnante, et $T_{1(non-res)} > T_{1(res)}$.

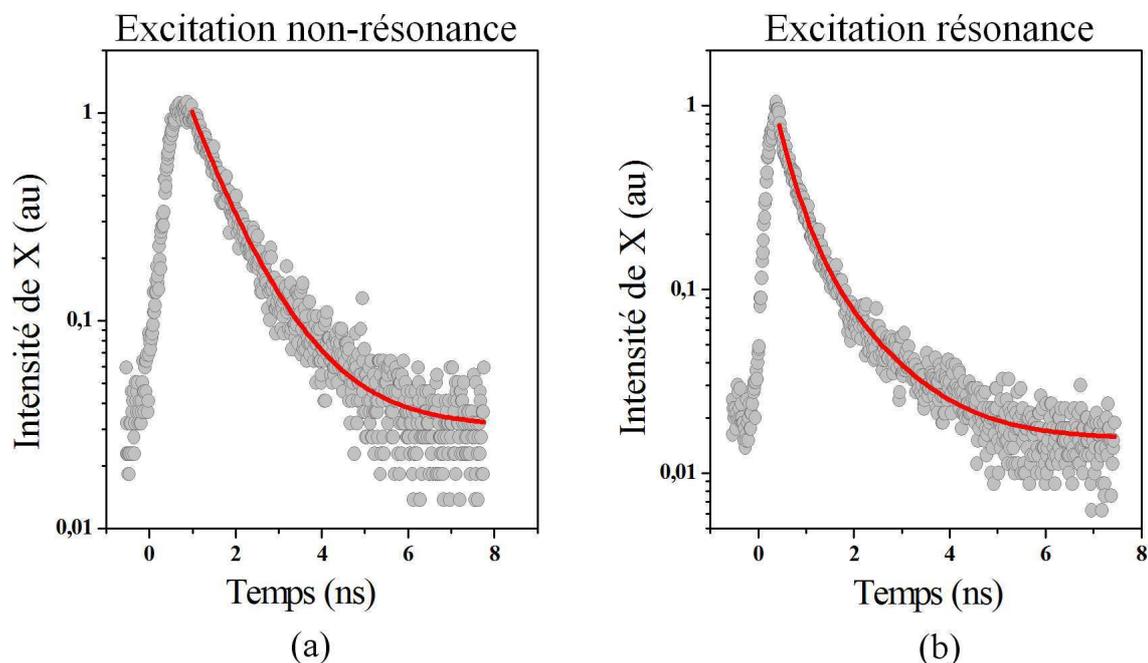


FIGURE 4.35 – Mesures de temps de vie radiatif de l'exciton neutre dans QD2 en excitation non-résonnante (a) et en excitation strictement résonnante assistée par le gate optique (b). Les ajustements donnent : $T_{1(non-res)} = 606 \pm 43 \text{ ps}$ et $T_{1(res)} = 331 \pm 16 \text{ ps}$.

4.4.3 Etudes en puissance d'excitation résonnante - Mesure du temps de cohérence

Nous avons effectué des mesures de PLE résonnante de l'exciton neutre dans QD2 à différentes puissances du laser d'excitation en gardant $p_{gate} = 3 \text{ nW}$. Les mesures de l'intensité du signal et de la largeur Γ' sont présentées sur la figure 4.36. Nous constatons que ces données sont parfaitement ajustées par les équations (3.65) et (3.67) du chapitre 3 relatives à un système à deux niveaux. Les ajustements donnent :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_2 = 480 \pm 10 \text{ ps} \\ p_0 = 16.5 \pm 1.5 \mu\text{W} \end{array} \right. \quad (4.54)$$

Nous déduisons de nos estimations de T_1 et de T_2 qu'à la résonance, nous atteignons $T_2 \approx 1.5 T_1$. De fait, la largeur homogène de l'exciton neutre dans QD2 sous excitation résonnante assistée par le gate optique est très proche de la limite radiative. Plus précisément, le temps de déphasage pure T_2^* est de l'ordre de 1.8 ns. Nous remarquons en plus que le signal de résonance sature à forte puissance d'excitation. Ce comportement à forte puissance est effectivement celui d'un système à deux niveaux où les états d'excitons chargés et de biexcitons de la boîte quantique ne sont pas du tout peuplés.

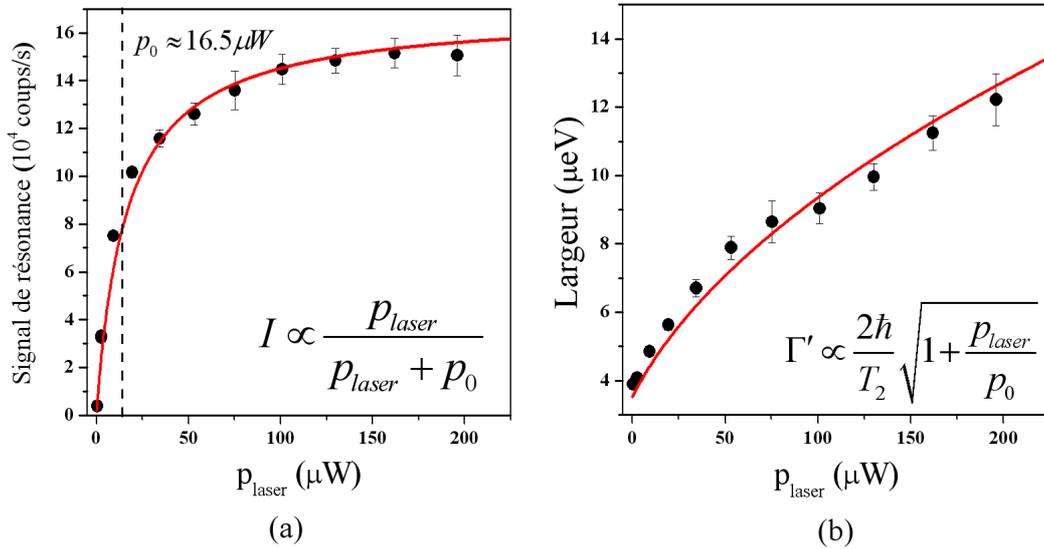


FIGURE 4.36 – Intensité (a) et largeur (b) des spectres de PLE résonnante de l'exciton neutre dans QD2 à différentes puissances d'excitation résonnante. La série de mesures est effectuée pour une puissance du gate optique de 3 nW. Les ajustements théoriques sont faits à l'aide d'un modèle de système à deux niveaux.

4.4.4 Spectre d'émission à très faible puissance d'excitation résonnante

Nous rappelons que le spectre d'émission résonnante d'un système à deux niveaux contient toujours un composante cohérente dont la largeur est égale à la largeur spectrale du laser d'excitation. Nous allons vérifier que sous l'effet du gate optique, cette composante cohérente est également présente. Pour cela, nous avons caractérisé le spectre d'émission résonnante, à désaccord nul et pour $p_{laser} = 2.4 p_0$, par des mesures de la fonction de corrélation d'ordre un $g^{(1)}(\tau)$ à l'aide d'un interféromètre de Michelson (comme les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ réalisées sur QD1 du chapitre 3 dans la page 102). Les données expérimentales sont présentées sur la figure 4.37(a) où nous pouvons distinguer les deux composantes cohérente et incohérente :

- La composante cohérente correspond au fond quasi-constant, de temps de cohérence 100 ns. Ce temps est attribué à la cohérence du laser qui est en réalité encore plus longue mais notre mesure est limitée par la fenêtre temporelle de détection.
- La composante incohérente montre un déclin exponentiel rapide de temps caractéristique 480 ps, en très bon accord avec la mesure de T_2 dans la section précédente.

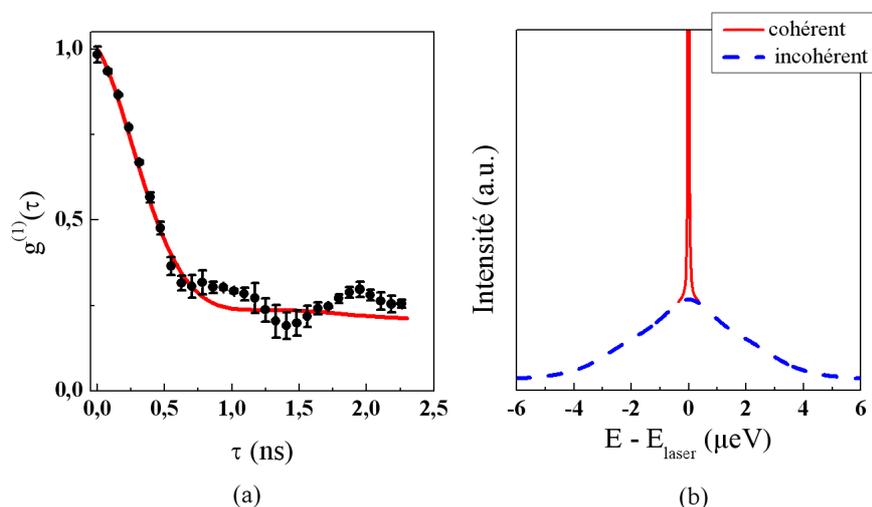


FIGURE 4.37 – (a) : Mesure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre 1 à l'aide d'un interféromètre de Michelson. Les données sont ajustées avec $\hbar\Omega = 2.5 \mu\text{eV}$, $T_1 = 330 \text{ ps}$, $T_2 = 480 \text{ ps}$ et un temps de cohérence de 100 ns du laser d'excitation. (b) Spectre d'émission résonnante obtenu par transformée de Fourier de la courbe d'ajustement de la figure a.

Les données sont parfaitement ajustées par l'équation théorique (3.58) du chapitre 3 avec les paramètres : $\hbar\Omega = 2.5 \mu\text{eV}$, $T_1 = 330 \text{ ps}$, $T_2 = 480 \text{ ps}$. La figure 4.37(b) représente le spectre d'émission avec les mêmes paramètres d'ajustements. Ce spectre d'émission est obtenu par transformée Fourier de la courbe théorique d'ajustement de la figure 4.37(a). Sur ce spectre, nous observons clairement une composante cohérente bien plus étroite que la limite radiative $\Gamma_{\text{rad}} = \hbar/T_1 \approx 2 \mu\text{eV}$.

4.4.5 Mesure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux

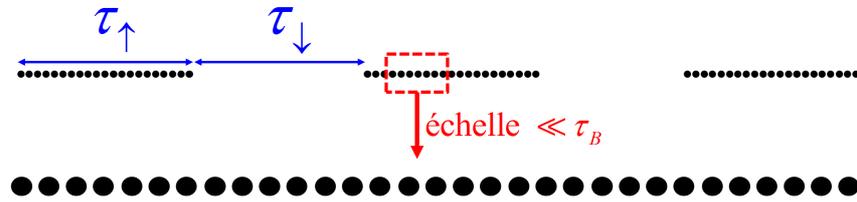


FIGURE 4.38 – A une échelle de temps très petite devant le temps caractéristique de bunching, le statistique des photons émis peut être considérée comme une émission continue de photons uniques, et non plus par paquets.

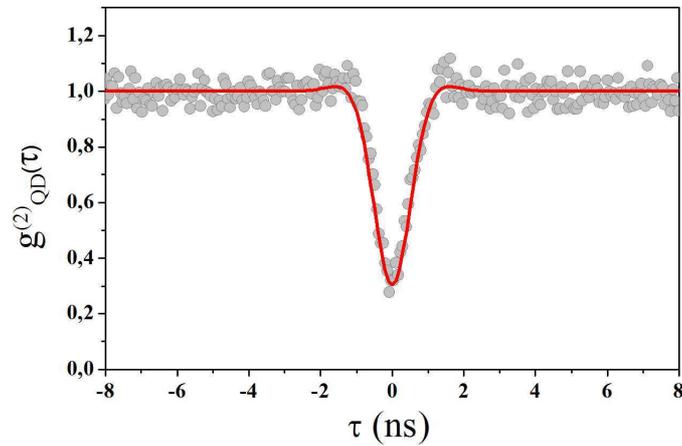


FIGURE 4.39 – Mesure de la fonction d'auto-corrélation d'ordre deux dans QD2 sous excitation résonnante. Les données sont ajustés par l'équation 3.89 du chapitre 3 avec les paramètres : $T_1 = 322 \text{ ps}$, $T_2 = 480 \text{ ps}$ et $\Omega = 2.5 \pm 0.2 \text{ ns}^{-1}$ en tenant compte de la résolution temporelle de 300 ps de notre dispositif expérimental.

Les études de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ dans la section précédente ont mis en évidence les effets de bunching de temps caractéristique $\tau_B = (\tau_{\uparrow}^{-1} + \tau_{\downarrow}^{-1})^{-1} \approx 2.5 \mu\text{s}$ à

$p_{gate} = 3 nW$. Comme $\tau_B \gg T_1, T_2$, nous n'observons pas ce *bunching* à l'échelle des temps T_1 et T_2 . En d'autres termes, à une échelle temporelle très petite devant τ_B , les photons uniques peuvent être considérés comme provenant d'une émission continue plutôt que par paquets (voir figure 4.38). En conséquence, nous pouvons effectuer une normalisation de la fonction $g^{(2)}(\tau)$ à petite échelle temporelle, comme si nous avions simplement une statistique de photons uniques d'un système à deux niveaux.

Nous avons réalisé une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ dans QD2 sous excitation résonnante, dans une fenêtre temporelle de $16 ns \ll \tau_B$. La normalisation est effectuée en considérant que la fonction atteint sa limite stationnaire aux deux extrémités de la fenêtre. Le résultat après avoir enlevé le fond du laser est représenté sur la figure 4.39. Les données sont ajustées par l'équation (3.61) du chapitre 3 avec les paramètres : $T_1 = 322 ps, T_2 = 480 ps$ et $\hbar\Omega = 1.3 \pm 0.1 \mu eV$ en tenant compte de la résolution temporelle de 300 ps de notre dispositif expérimental. Ce résultat montre que l'émission de QD2 sous excitation résonnante assistée par le gate optique est effectivement une émission de photons uniques d'un système à deux niveaux. En plus, en utilisant l'équation (3.64) de la page 92 du chapitre 3, nous estimons que 40% de ces photons ont la cohérence du laser d'excitation.

4.4.6 Etudes en polarisation

Enfin, nous présentons sur la figure 4.40 les diagrammes de polarisation de l'émission de X et de X^+ dans QD2 dans deux cas :

- Excitation résonnante assistée par le gate optique à $p_{gate} \approx 3nW$ (la polarisation du laser d'excitation résonnante est imposée par l'axe $[1\bar{1}0]$ du réseau cristallin).
- Excitation non-résonnante (la polarisation du laser d'excitation n'a pas d'influence sur les mesures)

Nous constatons sur la figure 4.40 que :

- Les diagrammes de polarisation de l'émission de X et de X^+ sont identiques dans le cas d'une excitation non-résonnante. En effet, la résolution spectrale de notre détecteur n'est pas suffisante pour résoudre la structure fine de X si bien que nous détectons à la fois les deux polarisations linéaires de l'exciton neutre X . En plus, avec le laser non-résonnant, la mémoire du spin initial imposé par le pompage optique est perdue pendant la relaxation non-radiative des porteurs dans la boîte quantique, et ils arrivent dans la boîte avec une orientation de spin arbitraire : les deux polarisations linéaires de X sont détectées simultanément.
- Le diagramme de polarisation de l'émission de X et de X^+ sont allongé suivant $[1\bar{1}0]$. Comme le diagramme de polarisation de l'émission de X^+ doit être allongé suivant l'axe d'anisotropie du mélange trou lourd - trou

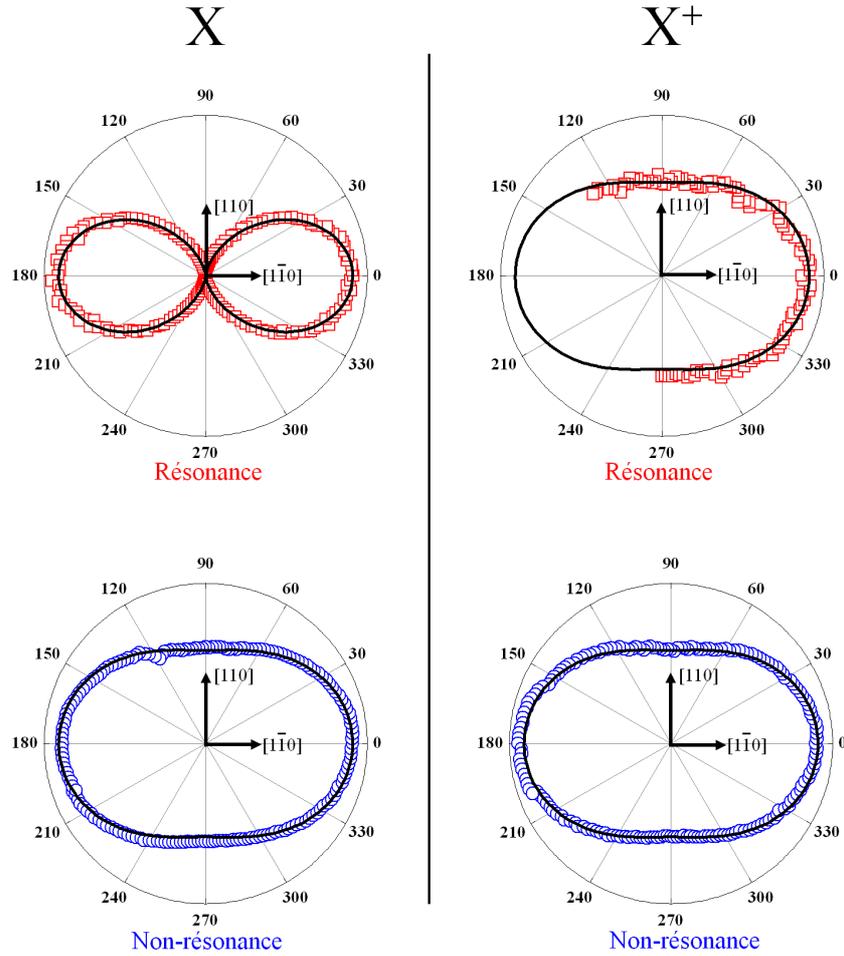


FIGURE 4.40 – Diagramme de polarisation de l'émission résonnante de X et de X^+ dans QD2 dans le cas des excitations non-résonnante, et résonnante assistée par le gate optique.

léger [81, 140], nous en déduisons que l'angle d'anisotropie du mélange trou lourd-trou léger est nul : $\xi = 0$. Par conséquent, les états propres de X sont suivant les axes de symétrie du potentiel de confinement : $X \equiv X_0$ et $Y \equiv Y_0$.

- Il n'y a qu'une seule composante de l'émission résonnante de l'exciton neutre qui est observée dans QD2, ce qui n'était pas le cas pour QD1 (voir la section 3.2.8 du chapitre 3, page 110). Nous en déduisons que les deux composantes X et Y de l'exciton neutre dans QD2 sont polarisées suivant les axes cristallographiques. Comme le laser d'excitation résonnante est suivant l'axe cristallographique $[1\bar{1}0]$, il ne peut exciter que la composante polarisée suivant $[1\bar{1}0]$. Par ailleurs, nous venons de voir que $X \equiv X_0$ et $Y \equiv Y_0$, ce qui implique que QD2 est allongée suivant les axes cristallographiques, à savoir

$\phi = 0$ (Φ est l'angle entre Y_0 avec $[1\bar{1}0]$).

Nos données expérimentales sont parfaitement ajustées par les équations (3.79) du chapitre 3 avec les paramètres :

$$\begin{cases} \xi &= 0 \\ \phi &= 0 \\ a &= 0.1 \\ b &= 0.9 \end{cases} \quad (4.55)$$

Dans la boîte quantique QD2, le facteur de mélange trou lourd - trou léger $|\beta| \approx 0.17$ est assez faible par rapport aux résultats des autres groupes [78–80].

Au final, nous remarquons que la polarisation linéaire de l'émission de l'exciton neutre X sous excitation résonnante correspond au comportement d'un système à deux niveaux pour QD2 où un seul état excitonique est excité et émet des photons. En d'autres termes, l'excitation résonnante de X ne concerne que deux états : l'état fondamental $|g\rangle$ et l'état excité $|e\rangle$ polarisé suivant $[1\bar{1}0]$.

4.5 Conclusion

Ce chapitre a mis en évidence le rôle de l'environnement électrostatique sur la réponse optique d'une boîte quantique unique, qui intervient même dans un régime d'excitation résonnante. Bien qu'une excitation résonnante ne crée pas de charges au voisinage de la boîte quantique, la présence des charges résiduelles qui viennent des accepteurs et donneurs non-intentionnels peut interdire l'émission résonnante par un phénomène du type blocage de Coulomb. Néanmoins, nous avons trouvé une solution pour contourner ce problème à l'aide d'un laser non-résonant de faible intensité, utilisé comme gate optique. Dans un régime de très faible puissance, le gate optique restaure non seulement l'émission résonnante de l'exciton neutre mais aussi tous les comportements caractéristiques d'un système à deux niveaux, et en particulier la nature ultra-cohérente des photons émis. Par ailleurs, nous avons tiré profit de manière originale de la configuration d'excitation résonnante pour sonder l'état fondamental de la boîte, qui est déterminé par la capture des électrons et des trous créés par le laser non-résonant. Cette méthode nous donne en particulier accès à des processus de capture ultra-lents dans les régimes de très faible puissance du gate où la photoluminescence non-résonnante est complètement négligeable. Les résultats de mesures de quatre grandeurs physiques différentes (signal de résonance, décalage énergétique, temps caractéristiques des phases transitoires, fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre) confirment quantitativement les hypothèses théoriques, et s'ajustent parfaitement par le modèle de population aléatoire que nous avons développé.

Conclusion générale

Dans cette thèse consacrée à l'étude de l'émission résonnante de boîtes quantiques InAs/GaAs uniques en microcavité planaire, nous avons tout d'abord étudié les propriétés de l'émission résonnante d'une boîte quantique unique, puis clarifié le rôle de l'environnement électrostatique fluctuant, et proposé un contrôle optique de l'émission résonnante.

Nous avons mis au point un montage d'excitation résonnante basé sur une fibre optique introduite à l'intérieur du cryostat. Le laser d'excitation qui est injecté dans la fibre arrive sous incidence normale sur la face clivée de l'échantillon et se propage dans le plan latéral de l'échantillon grâce à la cavité planaire qui agit comme un "guide d'onde bi-dimensionnel". L'émission de la boîte dans le mode de cavité, suivant l'axe de croissance de l'échantillon, est donc découplée spatialement de l'excitation. Cette technique permet de supprimer la quasi-totalité de la diffusion parasite du laser d'excitation qui est superposée au signal d'émission résonnante. Le signal détecté est ensuite analysé par différentes techniques de spectroscopie, telles que :

- la spectroscopie par transformée de Fourier pour mesurer la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ et obtenir le spectre d'émission avec une résolution spectrale de $1 \mu eV$;
- le montage de type Hanbury-Brown and Twiss pour mesurer la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$ et obtenir la statistique d'émission d'une boîte quantique unique ;
- la photoluminescence résolue en temps avec une résolution de $90 ps$ pour mesurer le temps de vie radiatif T_1 ;
- et l'excitation de la photoluminescence résonnante (PLE résonnante) avec une résolution de $0.5 \mu eV$ pour mesurer le signal de résonance, la structure fine de la boîte quantique et le temps de cohérence T_2 .

Nos résultats expérimentaux ont mis en évidence l'ensemble des propriétés d'un vrai système à deux niveaux où les dépendances en puissance du signal de

résonance, de la largeur du spectre de PLE résonnante, et des fonctions de corrélation $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ sont parfaitement ajustées par le modèle bien connu en physique atomique du système à deux niveaux. Le phénomène de diminution du temps de vie radiatif T_1 et d'augmentation du temps de cohérence T_2 sous excitation résonnante est expliqué par la minimisation des fluctuations de l'environnement électrostatique. En effet, l'excitation non-résonnante injecte beaucoup de porteurs dans le continuum d'états de la barrière ou de la couche de mouillage. Une grande portion de ces porteurs est capturée dans les pièges au voisinage de la boîte quantique. Sous l'effet du champ électrique latéral créé par ces porteurs piégés, le recouvrement de la fonction d'onde de l'électron et du trou de l'exciton neutre de la boîte quantique diminue. Par conséquent, le temps de vie radiatif T_1 sous excitation non-résonnante est plus grand que celui sous excitation résonnante. D'autre part, les porteurs piégés sont aussi des sources de décohérence du fait de la diffusion spectrale [23], et le temps de cohérence T_2 sous excitation non-résonnante est alors plus court que celui sous excitation résonnante. Nous avons également mis en évidence la composante cohérente de l'émission résonnante dans le régime des faibles puissances d'excitation. Les résultats expérimentaux obtenus sur la boîte quantique QD1 montrent la possibilité de réaliser une source de photons uniques où 50% des photons émis ont la cohérence du laser d'excitation (i.e. de l'ordre de $1 \mu s$). Cette fraction de photons "ultra-cohérents" pourrait atteindre 93% en diminuant la puissance d'excitation et en effectuant un filtrage spectral de la partie cohérente de l'émission résonnante à l'aide d'un interféromètre de type Fabry-Pérot. Il s'agit ici d'un nouveau type de source de photons uniques dont la cohérence n'est plus limitée par la largeur naturelle de la transition fondamentale. Ce dispositif quantique génère a priori des photons présentant un degré d'indiscernabilité élevé qui n'est plus contraint par la limite radiative, ce qui pourrait être très intéressant pour des applications en information quantique.

Bien que l'excitation résonnante ne photo-crée pas de charges à l'extérieur de la boîte quantique, nos résultats expérimentaux montrent que la limite radiative n'est pas atteinte même à température nulle. En fait, bien que l'environnement électrostatique fluctuant sous excitation résonnante soit minimisé, il n'est pas supprimé à cause de l'existence de trous résiduels probablement issus d'impuretés de carbone dans l'échantillon. Cet environnement fluctuant joue un rôle crucial dans l'émission résonnante, puisqu'il induit non seulement des processus non-radiatifs de déphasage pur, mais également une inhibition totale de l'émission résonnante de l'exciton neutre. Ce problème d'inhibition de l'émission résonnante est communément observé par différents groupes mais sans explication quantitative [30, 32]. Sur les boîtes quantiques où l'émission résonnante de l'exciton neutre est inhibée, nous observons l'émission résonnante de l'exciton chargé positif. En fait, les trous résiduels qui sont piégés dans les défauts d'interface au voisinage de la boîte peuvent entrer à l'intérieur de celle-ci par effet tunnel, bloquer l'absorption de photons à l'énergie de l'exciton neutre mais permettre l'absorption de photon à

l'énergie de l'exciton chargé positif. Pour résoudre ce problème, nous avons utilisé un laser non-résonnant comme "gate optique" permettant de contrôler l'état de charge de la boîte suite aux captures de charges photo-crées dans la barrière GaAs. Ce contrôle optique permet non seulement de débloquent l'émission résonnante, mais aussi de la contrôler en modifiant la puissance du gate optique dans la gamme des très faibles puissances où la photoluminescence non-résonnante générée par le gate est complètement négligeable. De plus, nous observons que la dépendance en énergie du gate optique du signal de résonance suit exactement le spectre d'absorption de la boîte quantique, ce qui montre que l'effet du gate optique est lié à l'absorption de la boîte. En fait, les trous résiduels sont éjectés un par un de la boîte quantique par recombinaison radiative avec les électrons photo-crées qui sont capturés également un par un dans la boîte. Ce processus neutralise l'état fondamental de la boîte et débloquent l'émission résonnante de l'exciton neutre. Cependant, l'état fondamental de la boîte n'est pas toujours neutre. L'état fondamental de la boîte et l'intensité de l'émission résonnante de l'exciton neutre dépendent des taux de capture de charges, qui varient avec la puissance du gate optique. La dynamique de l'état de charge de la boîte quantique est décrite par un modèle de population aléatoire que nous avons développé au cours de ce travail de thèse, et qui ajuste parfaitement l'ensemble des résultats expérimentaux. Nous montrons que l'émission résonnante permet en fait de "sonder" les processus de capture de charges dans la boîte quantique. Nos résultats présentés sur sept ordres de grandeur de puissance du gate optique ont mis en évidence les captures assistées par phonons optiques et par effet Auger dont les paramètres sont en très bon accord avec les calculs théoriques de différents groupes de recherche. Il s'agit d'une première confrontation entre théorie et expérience avec une telle dynamique, sur le thème de la capture de porteurs dans des boîtes quantiques. De plus, comme les porteurs sont éjectés et capturés très lentement, un par un dans le régime des faibles puissances du gate optique, l'émission résonnante a un comportement intermittent "tout ou rien" similaire au phénomène de "blinking" dans les nanocristaux. Les intervalles de temps où l'émission résonnante est inhibée correspondent aux intervalles de temps où l'état fondamental de la boîte est un état chargé, tandis que les photons émis pendant le reste du temps sont issus de l'émission d'un vrai système à deux niveaux. Les temps caractéristiques de ce "blinking" sont déterminés par les taux de capture des électrons et des trous dans la boîte quantique. L'émission résonnante contrôlée optiquement par le gate présente ainsi les mêmes propriétés que l'émission d'un système à deux niveaux. Nous montrons en particulier que la composante cohérente est aussi bien restituée par le gate optique que la composante incohérente. L'environnement électrostatique peut donc être totalement contrôlé par le gate optique. Cependant, pour les futurs échantillons, un contrôle de l'état de charge des boîtes quantiques par application d'un champ électrique latéral à l'aide de contacts électriques est nécessaire afin de s'affranchir de la dynamique permanente de ces états sous contrôle optique, qui est à l'origine du phénomène de "blinking".

Enfin, nos résultats confirment qu'une boîte quantique unique sous excitation résonnante peut être considérée comme un système à deux niveaux et mérite donc l'appellation d'"atome artificiel". Cela ouvre la possibilité de réaliser des expériences d'optique quantique qui étaient jusqu'à présent réservées à la physique atomique. Parmi ces expériences, nous pouvons citer par exemple les mesures d'interférences entre la composante cohérente de l'émission résonnante et le laser d'excitation [154], les mesures de la fonction d'auto-corrélation intensité-champ d'ordre 3/2 qui donnent directement accès à l'amplitude du champ électrique [155] et les mesures de tomographie homodyne pour mettre en évidence les états de Fock à un photon émis par une boîte quantique unique [156, 157]. En comparaison avec des expériences qui nécessitent de piéger et refroidir les atomes, ces mêmes expériences réalisées sur des boîtes quantiques qui sont des structures solides sont non seulement beaucoup plus compactes, mais aussi plus facilement intégrables dans des circuits logiques pour des applications en information quantique. Nous pouvons également envisager d'améliorer l'efficacité de la source de photons uniques ultra-cohérente en insérant la boîte quantique dans des microcavités de meilleure finesse de type micropilier ou cristal photonique [17, 18], ou en intégrant la boîte dans un fil photonique [139] afin d'obtenir une meilleure extraction de l'émission résonnante. Cela permettrait ainsi de réaliser une source de photons uniques indiscernables ultra-cohérente et ultra brillante.

Annexe A

Systeme à deux niveaux sous excitation résonnante

Cette annexe présente les calculs détaillés des résultats de la partie 3.1 du chapitre 3. Les grandeurs physiques abordées ici sont introduites et expliquées dans le chapitre 3 et nous ne présentons ici que les calculs analytiques qui les concernent. Nous remarquons que les résultats dans le cas de la limite de radiative sont déjà calculés par C.Cohen-Tannoudji [8, 132], R.Loudon [112], M. O.Scully et M.S.Zubairy [129]. Cependant, nous n'avons trouvé aucune référence qui traite le cas général où la limite radiative n'est pas atteinte. Comme les méthodes de calculs du cas général sont les mêmes que celles du cas de la limite radiative mais beaucoup plus lourds, nous supposons que les livres d'optique quantique n'étudient que le cas de la limite radiative d'un but pédagogique. De plus, nous allons présenter les calculs à la fois pour les intensités et les fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ afin d'avoir un vuee d'ensemble, tandis que les références sont concentrées soit sur les intensités [8, 132], soit sur les fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ [112, 129].

Sommaire

A.1 Solutions exactes des équations de Bloch optiques	
$T_2 \neq 2T_1$	176
A.1.1 Equations de Bloch optique dans le cas général	176
A.1.2 Solution en régime stationnaire - Calculs d'intensité .	176
A.1.3 Solution analytique exacte	177
A.2 Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre	
$g^{(1)}(\tau)$	180
A.2.1 Théorème de régression quantique	180
A.2.2 Application du théorème de régression quantique pour calculer $g^{(1)}(\tau)$	181
A.2.3 Spectre d'émission résonnante	183
A.3 Calcul de la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$	185

A.1 Solutions exactes des équations de Bloch optiques $T_2 \neq 2T_1$

A.1.1 Equations de Bloch optique dans le cas général

Dans le cas général où la limite radiative n'est pas atteinte, les équations de Bloch optiques sont données par :

$$\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} = \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{eg} - \hat{\rho}_{ge}) - \frac{1}{T_1}\hat{\rho}_{ee} \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{gg}}{dt} = -\frac{d\hat{\rho}_{ee}}{dt} \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{eg}}{dt} = i\delta\hat{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2}(\hat{\rho}_{ee} - \hat{\rho}_{gg}) - \frac{1}{T_2}\hat{\rho}_{eg} \quad (\text{A.3})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{ge}}{dt} = \frac{d\hat{\rho}_{eg}^*}{dt} \quad (\text{A.4})$$

ou bien :

$$\frac{d\langle S_z \rangle}{dt} = i\Omega(\langle S_- \rangle - \langle S_+ \rangle) - \frac{1}{T_1}(\langle S_z \rangle + 1) \quad (\text{A.5})$$

$$\frac{d\langle S_{\pm} \rangle}{dt} = -\left(\pm i\delta + \frac{1}{T_2}\right)\langle S_{\pm} \rangle \mp \frac{i\Omega}{2}\langle S_z \rangle \quad (\text{A.6})$$

avec $\delta = \omega_L - \omega_0$

A.1.2 Solution en régime stationnaire - Calculs d'intensité

D'après l'équation (A.6), nous avons, en régime stationnaire :

$$\langle S_{\pm} \rangle_{st} = -\frac{i\Omega T_2}{2(\pm 1 + i\delta T_2)}\langle S_z \rangle_{st} \quad (\text{A.7})$$

En remplaçant ce résultat dans l'équation (A.5), nous obtenons pour ce régime :

$$\langle S_z \rangle_{st} = -\frac{1 + \delta^2 T_2^2}{1 + \Omega^2 T_1 T_2 + T_2^2 \delta^2} \quad (\text{A.8})$$

Or l'intensité totale détectée et sa composante cohérente sont données par (voir chapitre 3, page 82) :

$$I \propto \frac{1 + \langle S_z \rangle_{st}}{2} \quad (\text{A.9})$$

et

$$\begin{aligned} I_{\text{cohérent}} &\propto \langle S_+ \rangle_{st} \langle S_- \rangle_{st} \\ &\propto \frac{\Omega^2 T_2^2}{4(1 + \delta^2 T_2^2)} \langle S_z \rangle_{st}^2 \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

Nous obtenons finalement :

$$I \propto \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2 + T_2^2 \delta^2)} \quad (\text{A.11})$$

$$I_{\text{cohérent}} \propto \frac{\Omega^2 T_2^2 (1 + T_2^2 \delta^2)}{4(1 + \Omega^2 T_1 T_2 + T_2^2 \delta^2)^2} \quad (\text{A.12})$$

pour $\delta = 0$:

$$\frac{I_{\text{cohérent}}}{I} = \frac{T_2}{2T_1} \frac{1}{1 + \Omega^2 T_1 T_2} \quad (\text{A.13})$$

Dans le cas de la limite radiative $T_1^{-1} = 2T_2^{-1} \equiv \Gamma$, ces résultats deviennent :

$$I \propto \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2} \quad (\text{A.14})$$

$$I_{\text{cohérent}} \propto \frac{\Omega^2 (\Gamma^2 + 4\delta^2)}{(\Gamma^2 + 2\Omega^2 + 4\delta^2)^2} \quad (\text{A.15})$$

pour $\delta = 0$

$$\frac{I_{\text{cohérent}}}{I} = \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \quad (\text{A.16})$$

Nous vérifions que ces résultats obtenus dans la limite radiative sont les mêmes que ceux qui sont calculés dans les références [8, 132]

A.1.3 Solution analytique exacte

A.1.3.a Changement de variables

Nous effectuons un changement de base propre du système à deux niveaux $(|e\rangle, |g\rangle) \rightarrow (|+\rangle, |-\rangle)$, où :

$$|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|e\rangle \pm |g\rangle) \quad (\text{A.17})$$

ou bien :

$$\begin{cases} |e\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle + |-\rangle) \\ |g\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\rangle - |-\rangle) \end{cases} \quad (\text{A.18})$$

La matrice densité réduite dans chaque base s'écrit sous la forme :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{pmatrix}_{[|e\rangle, |g\rangle]} = \begin{pmatrix} \rho_{++} & \rho_{+-} \\ \rho_{-+} & \rho_{--} \end{pmatrix}_{[|+\rangle, |-\rangle]} \quad (\text{A.19})$$

avec :

$$\begin{cases} \rho_{++} &= \frac{1}{2}(\rho_{eg} + \rho_{ge}) + \frac{1}{2} \\ \rho_{--} &= 1 - \rho_{++} \\ \rho_{+-} &= \rho_{ee} - \frac{1}{2}(\rho_{eg} - \rho_{ge}) - \frac{1}{2} \\ \rho_{-+} &= \rho_{+-}^* \end{cases} \quad (\text{A.20})$$

Nous nous inspirons de ce changement de variables pour calculer les éléments de matrice dans le référentiel tournant de fréquence ω_L :

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{++} &= \frac{1}{2}(\hat{\rho}_{eg} + \hat{\rho}_{ge}) + \frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{--} &= 1 - \hat{\rho}_{++} \\ \hat{\rho}_{+-} &= \hat{\rho}_{ee} - \frac{1}{2}(\hat{\rho}_{eg} - \hat{\rho}_{ge}) - \frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{-+} &= \hat{\rho}_{+-}^* \end{cases} \quad (\text{A.21})$$

D'autre part, nous avons (voir le chapitre 3) :

$$\begin{cases} \langle S_z \rangle &= 2\hat{\rho}_{ee} - 1 \\ \langle S_- \rangle &= \hat{\rho}_{eg} \\ \langle S_+ \rangle &= \hat{\rho}_{ge} \end{cases} \quad (\text{A.22})$$

Alors :

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{++} &= \frac{\langle S_+ \rangle + \langle S_- \rangle}{2} + \frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{--} &= \hat{\rho}_{++} \\ \hat{\rho}_{\pm} &= \langle S_{\pm} \rangle \pm \frac{\langle S_+ \rangle - \langle S_- \rangle}{2} \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \langle S_z \rangle &= \hat{\rho}_{+-} + \hat{\rho}_{-+} \\ \langle S_{\pm} \rangle &= \hat{\rho}_{++} \pm \frac{\hat{\rho}_{+-} - \hat{\rho}_{-+}}{2} - \frac{1}{2} \end{cases} \quad (\text{A.23})$$

Les équations de Bloch optiques à la résonance ($\delta = 0$) s'écrivent en fonction des nouvelles variables :

$$\frac{d\hat{\rho}_{++}}{dt} = -\frac{1}{T_2}\hat{\rho}_{++} + \frac{1}{2T_2} \quad (\text{A.24})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{--}}{dt} = -\frac{d\hat{\rho}_{++}}{dt} \quad (\text{A.25})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{+-}}{dt} = -\left[\frac{1}{2}\left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) + i\Omega\right]\hat{\rho}_{+-} - \frac{1}{2}\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)\hat{\rho}_{-+} - \frac{1}{2T_1} \quad (\text{A.26})$$

$$\frac{d\hat{\rho}_{-+}}{dt} = \frac{d\hat{\rho}_{+-}^*}{dt} \quad (\text{A.27})$$

A.1.3.b Résolution

Le nouveau système d'équations est bien plus simple que celui du départ de la section A.1.1. En effet, $\hat{\rho}_{++}(t)$ se déduit directement de l'équation (A.24) :

$$\boxed{\hat{\rho}_{++}(t) = e^{-t/T_2} \hat{\rho}_{++}(0) + \frac{1}{2} (1 - e^{-t/T_2})} \quad (\text{A.28})$$

tandis que, d'après (A.26) et (A.27), $\hat{\rho}_{+-}(t)$ et $\hat{\rho}_{-+}(t)$ sont les solutions de l'équation différentielle :

$$\boxed{\dot{X}(t) = -AX(t) + B} \quad (\text{A.29})$$

où :

$$X = \begin{pmatrix} \hat{\rho}_{+-}(t) \\ \hat{\rho}_{-+}(t) \end{pmatrix} \quad (\text{A.30})$$

$$A = \begin{pmatrix} \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) + i\Omega & \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) \\ \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) & \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) - i\Omega \end{pmatrix} \quad (\text{A.31})$$

$$B = \frac{1}{2T_1} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.32})$$

La matrice A possède deux vecteurs propres v_1, v_2 qui correspondent aux deux valeurs propres λ_1 et λ_2 , telles que :

$$v_1 = \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} \quad (\text{A.33})$$

$$v_2 = \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ \cos \theta \end{pmatrix} \quad (\text{A.34})$$

$$\lambda_{1(2)} = \eta \pm i\nu \quad (\text{A.35})$$

où

$$\begin{cases} \eta &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \\ \nu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)^2} \\ \tan \theta &= -\frac{2i(\Omega - \nu)T_1T_2}{T_2 - T_1} \end{cases} \quad (\text{A.36})$$

La diagonalisation de A est obtenue par :

$$\underbrace{\begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 \\ 0 & \lambda_2 \end{pmatrix}}_{\equiv D} = \underbrace{\begin{pmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}}_{\equiv P^{-1}} A \underbrace{\begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}}_{\equiv P} \quad (\text{A.37})$$

Alors la solution de l'équation matricielle différentielle d'ordre 1 (A.29) est donnée par :

$$X(t) = (Pe^{-Dt}P^{-1})X(0) + PD^{-1}(1 - e^{-Dt})P^{-1}B \quad (\text{A.38})$$

Nous en déduisons les éléments de matrice de $X(t)$:

$$\begin{cases} \boxed{\hat{\rho}_{+-}(t) = C_1(t)\hat{\rho}_{+-}(0) + C_2(t)\hat{\rho}_{-+}(0) + C_3(t)} \\ \boxed{\hat{\rho}_{-+}(t) = \hat{\rho}_{+-}^*(t)} \end{cases} \quad (\text{A.39})$$

où¹ :

$$\begin{cases} C_1(t) = e^{-\eta t} \left(\cos \nu t - \frac{i\Omega}{\nu} \sin \nu t \right) \\ C_2(t) = -\frac{1}{\nu} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) e^{-\eta t} \sin \nu t \\ C_3(t) = \frac{1-i\Omega T_2}{2(1+\Omega^2 T_1 T_2)} (e^{-\eta t} \cos \nu t - 1) - \frac{\frac{T_2-T_1}{T_2} - 2\Omega^2 T_1 T_2 + i\Omega(T_1+T_2)}{4\nu T_1(1+\Omega^2 T_1 T_2)} e^{-\eta t} \sin \nu t \end{cases} \quad (\text{A.40})$$

A.2 Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$

A.2.1 Théorème de régression quantique

Dans le cas d'une excitation résonnante, la fonction $g^{(1)}(\tau)$ s'écrit sous la forme (voir la section 3.1.2.c du chapitre 3) :

$$g^{(1)}(\tau) \propto e^{i\omega_0 \tau} \langle S_+(t+) S_-(t+\tau) \rangle_{st} \quad (\text{A.41})$$

Pour calculer cette fonction, nous utilisons le *théorème de régression quantique* puisque les équations de Bloch optiques A.6 ne donne que les expressions de $\langle S_z(t) \rangle$ et $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ mais pas les termes de corrélation $\langle S_+(t+\tau) S_-(t) \rangle$. En effet, ce théorème va nous permettre d'écrire $\langle S_+(t+\tau) S_-(t) \rangle$ en fonction de $\langle S_z(t) \rangle$ et $\langle S_{\pm}(t) \rangle$.

1. Il faut faire beaucoup de développements trigonométriques pour déduire $C_i(t)$. Ces calculs sont tellement fastidieux que nous ne précisons pas ici.

A.2. Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ 181

L'énoncé du théorème de régression quantique est le suivant : *Si la valeur moyenne à l'instant $t + \tau$ d'un opérateur A peut être représenté comme une combinaison linéaire des valeur moyenne à l'instant t des opérateurs A_i telle que :*

$$\langle A(t + \tau) \rangle = \sum_i \alpha_i(\tau) \langle A_i(t) \rangle \quad (\text{A.42})$$

alors :

$$\begin{aligned} \langle B(t)A(t + \tau)C(t) \rangle &= \sum_i \alpha_i(\tau) \langle B(t)A_i(t)C(t) \rangle \\ &= \sum_i \alpha_i(\tau) \langle BA_iC \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.43})$$

A.2.2 Application du théorème de régression quantique pour calculer $g^{(1)}(\tau)$

Nous calculons d'abord $\langle S_-(t + \tau) \rangle$ en fonction de $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ et $\langle S_z(t) \rangle$. D'après (A.23), nous avons :

$$\langle S_-(t + \tau) \rangle = \hat{\rho}_{++}(t + \tau) + \frac{1}{2} (\hat{\rho}_{-+}(t + \tau) - \hat{\rho}_{+-}(t + \tau)) - \frac{1}{2} \quad (\text{A.44})$$

or $\hat{\rho}_{++}(t + \tau)$ et $\hat{\rho}_{\pm}(t + \tau)$ peuvent s'écrire en fonction de $\hat{\rho}_{++}(t)$ et $\hat{\rho}_{\pm}(t)$ à l'aide de (A.28) et (A.39) :

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{++}(t + \tau) &= e^{-\tau/T_2} \hat{\rho}_{++}(t) + \frac{1}{2} (1 - e^{-\tau/T_2}) \\ \hat{\rho}_{+-}(t + \tau) &= C_1(\tau) \hat{\rho}_{+-}(t) + C_2(\tau) \hat{\rho}_{-+}(t) + C_3(\tau) \\ \hat{\rho}_{-+}(t + \tau) &= \hat{\rho}_{-+}(t + \tau)^* \end{cases} \quad (\text{A.45})$$

alors :

$$\begin{aligned} \langle S_-(t + \tau) \rangle &= e^{-\tau/T_2} \hat{\rho}_{++}(t) - \frac{C_1(\tau) - C_2^*(\tau)}{2} \hat{\rho}_{+-}(t) \\ &\quad - \frac{C_2(\tau) - C_1^*(\tau)}{2} \hat{\rho}_{-+}(t) - i.Im(C_3(\tau)) - \frac{1}{2} (1 - e^{-\tau/T_2}) \end{aligned} \quad (\text{A.46})$$

En utilisant une deuxième fois (A.23) pour exprimer $\hat{\rho}_{++}(t)$ et $\hat{\rho}_{\pm}(t)$ en fonction de $\langle S_z(t) \rangle$ et de $\langle S_{\pm}(t) \rangle$, nous obtenons :

$$\boxed{\langle S_-(t + \tau) \rangle = \alpha_1(\tau) + \alpha_2(\tau) \langle S_-(t) \rangle + \alpha_3(\tau) \langle S_+(t) \rangle + \alpha_4(\tau) \langle S_z(t) \rangle} \quad (\text{A.47})$$

où

$$\begin{cases} \alpha_1(\tau) &= -\frac{i\Omega T_2}{2(1+\Omega^2 T_1 T_2)} [1 - e^{-\eta\tau} (\cos \nu\tau + \frac{\eta}{\nu} \sin \nu\tau)] \\ \alpha_2(\tau) &= \frac{1}{2} e^{-\tau/T_2} + \frac{1}{2} e^{-\eta\tau} \left(\cos \nu\tau + \frac{T_2 - T_1}{2\nu T_1 T_2} \sin \nu\tau \right) \\ \alpha_3(\tau) &= \frac{1}{2} e^{-\tau/T_2} - \frac{1}{2} e^{-\eta\tau} \left(\cos \nu\tau + \frac{T_2 - T_1}{2\nu T_1 T_2} \sin \nu\tau \right) \\ \alpha_4(\tau) &= \frac{i\Omega}{2\nu} e^{-\eta\tau} \sin \nu\tau \end{cases} \quad (\text{A.48})$$

Ce résultat nous permet de calculer le terme de corrélation $\langle S_+(t+\tau) S_-(t) \rangle$ à l'aide de *théorème de régression quantique* :

$$\begin{aligned} \langle S_+(t) S_-(t+\tau) \rangle &= \alpha_1(\tau) \langle S_+(t) \rangle + \alpha_2(\tau) \langle S_+(t) S_-(t) \rangle \\ &+ \alpha_3(\tau) \langle S_+(t)^2 \rangle + \alpha_4(\tau) \langle S_+(t) S_z(t) \rangle \end{aligned} \quad (\text{A.49})$$

or

$$\begin{cases} \langle S_+ S_- \rangle &= \frac{1 + \langle S_z \rangle}{2} \\ \langle S_+ S_+ \rangle &= 0 \\ \langle S_+ S_z \rangle &= -\langle S_+ \rangle \end{cases} \quad (\text{A.50})$$

alors :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0\tau} \langle S_+(t+\tau) S_-(t) \rangle_{st} \quad (\text{A.51})$$

$$= e^{i\omega_0\tau} \left[(\alpha_1 - \alpha_4) \langle S_+ \rangle_{st} + \frac{\alpha_2}{4} \langle S_z \rangle_{st} + \frac{\alpha_2}{2} \right] \quad (\text{A.52})$$

Nous déduisons finalement :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0\tau} \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left\{ \frac{\frac{T_2}{2T_1}}{1 + \Omega^2 T_1 T_2} + \frac{e^{-\frac{\tau}{T_2}}}{2} + \frac{e^{-\eta\tau}}{2} \left(\tilde{\alpha} \cos \nu\tau + \tilde{\beta} \sin \nu\tau \right) \right\} \quad (\text{A.53})$$

où :

$$\begin{cases} \eta &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \\ \nu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)^2} \\ \tilde{\alpha} &= 1 - \frac{T_2}{T_1(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \\ \tilde{\beta} &= \frac{\Omega^2 T_1 (3T_2 - T_1) - \frac{(T_1 - T_2)^2}{T_1 T_2}}{2\nu T_1 (1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \end{cases} \quad (\text{A.54})$$

Quelques cas particuliers :

1. Pour un laser d'excitation de temps de cohérence T_L non infini (mais $T_L \gg T_1, T_2$) : Les calculs précédents sont effectués en considérant le spectre du laser d'excitation comme une fonction de Dirac. Dans le cas réel où le spectre de laser est une lorentzienne de largeur spectral $\frac{2\hbar}{T_L}$, le premier terme de l'équation (A.53) (qui représente la composante cohérente) va apparaître en $e^{-\tau/T_L}$. En effet, comme le spectre de la composante cohérente de l'émission est le même que celui du laser d'excitation [8, 132], le temps de cohérence de la composante cohérente de l'émission est donc égale au temps de cohérence T_L du laser. Si nous supposons que le laser est une lorentzienne, alors la transformée de Fourier inverse de cette lorentzienne sera une exponentielle

A.2. Calcul de la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ 183

décroissante de temps caractéristique T_L . Par conséquent, nous avons :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0 t} \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left\{ \frac{T_2}{2T_1} e^{-\frac{\tau}{T_L}} + \frac{e^{-\frac{\tau}{T_2}}}{2} + \frac{e^{-\eta\tau}}{2} \left(\tilde{\alpha} \cos \nu\tau + \tilde{\beta} \sin \nu\tau \right) \right\} \quad (\text{A.55})$$

dans le régime à très faible puissance d'excitation $\left(\Omega \ll \frac{1}{2} \left| \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right|, \frac{1}{T_1}, \frac{1}{T_2} \right)$, en faisant un développement limité d'ordre 2, nous obtenons :

$$g^{(1)}(\tau) \propto e^{-\tau/T_L} + \left[\frac{2T_1}{T_2} (1 + \Omega^2 T_1 T_2) - 1 \right] e^{-\tau/T_2} \quad (\text{A.56})$$

2. Dans le cas de la limite radiative $T_1^{-1} = 2T_2^{-1} \equiv \Gamma$ avec un laser d'excitation monochromatique, nous obtenons :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0 t} \frac{\Omega^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \left\{ \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} + \frac{e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}}}{2} + \frac{e^{-\frac{3\Gamma\tau}{4}}}{2} (\alpha \cos \mu\tau + \beta \sin \mu\tau) \right\} \quad (\text{A.57})$$

où

$$\begin{cases} \mu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{\Gamma^2}{16}} \\ \alpha &= 1 - \frac{2\Gamma^2}{2\Omega^2 + \Gamma^2} \\ \beta &= \frac{\Gamma}{4\mu} \frac{10\Omega^2 - \Gamma^2}{2\Omega^2 + \Gamma^2} \end{cases} \quad (\text{A.58})$$

Ce résultat est le même que celui qui est obtenu dans les mêmes conditions dans les références [112, 129]

A.2.3 Spectre d'émission résonnante

La densité spectrale (i.e. le spectre de photoluminescence) est donné par la transformée Fourier de la fonction $g^1(\tau)$ [112] :

$$\mathcal{I}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} g^{(1)}(\tau) \quad (\text{A.59})$$

$$= \frac{1}{\pi} \text{Re} \left[\int_0^{\infty} d\tau e^{-i\omega\tau} g^{(1)}(\tau) \right] \quad (\text{A.60})$$

$$(\text{A.61})$$

Pour faciliter le calcul d'intégral, nous réécrivons (A.53) sous une nouvelle forme, telle que :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0 t} \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left\{ \frac{\frac{T_2}{2T_1}}{1 + \Omega^2 T_1 T_2} + \frac{e^{-\frac{\tau}{T_2}}}{2} + \frac{e^{-\eta\tau}}{4} \left[e^{-i\nu\tau} (\tilde{\alpha} + i\tilde{\beta}) + e^{i\nu\tau} (\tilde{\alpha} - i\tilde{\beta}) \right] \right\} \quad (\text{A.62})$$

Comme le premier terme de (A.62) donne la partie cohérente et les trois derniers termes correspondent aux trois raies du triplet de Mollow de la partie incohérente, nous obtenons :

$$\mathcal{I}_{\text{cohérent}}(\omega) \propto \frac{\Omega^2 T_2^2}{4(1 + \Omega^2 T_1 T_2)^2} \delta(\omega - \omega_0) \quad (\text{A.63})$$

$$\mathcal{I}_{\text{incohérent}}(\omega) \propto \frac{\Omega^2 T_2 T_1}{8\pi(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left[\frac{\frac{2}{T_2}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{T_2^2}} + \frac{\eta\tilde{\alpha} + (\omega + \nu - \omega_0)\tilde{\beta}}{(\omega + \nu - \omega_0)^2 + \eta^2} + \frac{\eta\tilde{\alpha} - (\omega - \nu - \omega_0)\tilde{\beta}}{(\omega - \nu - \omega_0)^2 + \eta^2} \right] \quad (\text{A.64})$$

Les intégrales précédentes sont calculées à l'aide des formules suivantes :

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\tau e^{-i(\omega - \omega_0)\tau} = 2\pi \delta(\omega - \omega_0) \quad (\text{A.65})$$

$$\int_0^{\infty} d\tau e^{[k - i(\omega - \omega_0)]\tau} = \frac{1}{i(\omega_0 - \omega) + k} \quad (\text{A.66})$$

Pour un laser d'excitation de temps caractéristique T_L non infini (mais $T_L \gg T_1, T_2$), le terme de cohérence devient :

$$\mathcal{I}_{\text{cohérent}}(\omega) \propto \frac{\Omega^2 T_2^2}{4\pi(1 + \Omega^2 T_1 T_2)^2} \frac{\frac{1}{T_L}}{(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{T_L^2}} \quad (\text{A.67})$$

Dans le cas de la limite radiative $T_1^{-1} = 2T_2^{-1} \equiv \Gamma$ avec un laser d'excitation monochromatique, nous obtenons :

$$\mathcal{I}(\omega)_{\text{cohérent}} \propto \left(\frac{\Omega\Gamma}{\Gamma^2 + 2\Omega^2} \right)^2 \delta(\omega - \omega_0) \quad (\text{A.68})$$

$$\mathcal{I}(\omega)_{\text{incohérent}} \propto \frac{\Omega^2}{4\pi(\Gamma^2 + 2\Omega^2)} \left[\frac{\Gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Gamma/2)^2} + \frac{\frac{3\Gamma}{4}\alpha + (\omega + \mu - \omega_0)\beta}{(\omega + \mu - \omega_0)^2 + (3\Gamma/4)^2} + \frac{\frac{3\Gamma}{4}\alpha - (\omega - \mu - \omega_0)\beta}{(\omega - \mu - \omega_0)^2 + (3\Gamma/4)^2} \right] \quad (\text{A.69})$$

Ces derniers résultats obtenus pour la limite radiative sont les mêmes que ceux qui sont calculés dans la référence [129]

A.3 Calcul de la fonction d'auto-corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$

La fonction d'auto-corrélation d'ordre deux est donnée par (voir chapitre 3) :

$$\begin{aligned}
 g^{(2)}(\tau) &= \left. \frac{\rho_{ee}(\tau)}{\rho_{ee}(\infty)} \right|_{\rho_{gg}(0)=1} \\
 &= \left. \frac{\hat{\rho}_{ee}(\tau)}{\hat{\rho}_{ee}(\infty)} \right|_{\hat{\rho}_{gg}(0)=1} \\
 &= \left. \frac{Re\left(\hat{\rho}_{+-}(\tau) + \frac{1}{2}\right)}{\langle S_z \rangle_{st} + \frac{1}{2}} \right|_{\hat{\rho}_{gg}(0)=1}
 \end{aligned} \tag{A.70}$$

La condition initiale $\hat{\rho}_{gg}(0) = 1$ revient à imposer la détection d'un photon à $t = 0$. Comme il y a non seulement une relaxation de population mais aussi de cohérence, les conditions initiales complètes sont :

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{ee}(0) = 0 \\ \hat{\rho}_{gg}(0) = 1 \\ \hat{\rho}_{eg}(0) = 0 \\ \hat{\rho}_{ge}(0) = 0 \end{cases} \tag{A.71}$$

D'après les équations (A.21), nous obtenons :

$$\begin{cases} \hat{\rho}_{++}(0) = \frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{--}(0) = \frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{+-}(0) = -\frac{1}{2} \\ \hat{\rho}_{-+}(0) = \frac{1}{2} \end{cases} \tag{A.72}$$

En appliquant ces conditions initiales à la solution (A.39) des équations de Bloch optiques, nous avons :

$$\hat{\rho}_{+-}(\tau) = C_3(\tau) - \frac{C_1(\tau)}{2} - \frac{C_2(\tau)}{2} \tag{A.73}$$

or, pour une excitation strictement résonnante :

$$\langle S_z \rangle_{st} = -\frac{1}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \tag{A.74}$$

Alors :

$$g^{(2)}(\tau) = \left(1 + \frac{1}{\Omega^2 T_1 T_2}\right) \left[1 + Re\left(2C_3(\tau) - C_1(\tau) - C_2(\tau)\right)\right] \tag{A.75}$$

$$\Rightarrow \boxed{g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\eta\tau} \left(\cos \nu\tau + \frac{\eta}{\nu} \sin \nu\tau\right)} \tag{A.76}$$

où

$$\begin{cases} \eta &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \\ \nu &= \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right)^2} \end{cases} \quad (\text{A.77})$$

Dans le régime de très faibles puissances d'excitation ($\Omega \ll \frac{1}{2} \left| \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right|$), nous obtenons :

$$g^{(2)}(\tau) \approx 1 - \frac{1}{T_2 - T_1} \left(T_2 e^{-2\tau/T_2} - T_1 e^{-2\tau/T_1} \right) \quad (\text{A.78})$$

A la limite radiative où $T_1^{-1} = 2T_2^{-1} \equiv \Gamma$, nous obtenons :

$$\boxed{g^{(2)}(\tau) = 1 - \left(\cos \mu\tau + \frac{3\Gamma}{4\mu} \sin \mu\tau \right) e^{-\frac{3\Gamma}{4}\tau}} \quad (\text{A.79})$$

où $\mu = \sqrt{\Omega^2 - \frac{\Gamma^2}{16}}$

Nous retrouvons les résultats donnés par les références [112, 129].

A.4 Spectre d'émission résonnante dans le cadre de l'atome habillé

Nous pouvons obtenir qualitativement *le triplet de Mollow* du spectre d'émission résonnante dans la limite des très fortes puissances d'excitation à l'aide du modèle de l'atome habillé [8]. En effet, nous rappelons le Hamiltonian d'un système à deux niveaux sous excitation résonnante donnée par l'équation (3.1) de la section 3.1.1 du chapitre 3 :

$$H = \underbrace{\frac{1}{2} \hbar \omega_0 \left(|e\rangle \langle e| - |g\rangle \langle g| \right)}_{\text{boîte quantique}} + \underbrace{\hbar \omega_L a^\dagger a}_{\text{champ EM}} + \underbrace{\hbar g \left(|e\rangle \langle g| a + |g\rangle \langle e| a^\dagger \right)}_{\text{couplage lumière-matière}} \quad (\text{A.80})$$

A la résonance $\omega_L = \omega_0$, les états propres du Hamiltonian précédent sont (une vérification simple est faite en les remplaçant directement dans l'équation de Schrödinger) :

$$|\pm, m\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|e, m\rangle \pm |g, m+1\rangle) \quad (\text{A.81})$$

où m est un nombre entier.

Les valeurs propres associées aux états propres $|\pm, m\rangle$ sont respectivement égales à $\omega_0 + \frac{\hbar \Omega_m}{2}$ et $\omega_0 - \frac{\hbar \Omega_m}{2}$, où $\Omega_m = 2g\sqrt{m+1}$. Les états $|e, m\rangle$ et $|g, m+1\rangle$

A.4. Spectre d'émission résonnante dans le cadre de l'atome habillé 87

sont deux états dit "habillés" car ils portent à la fois l'information sur l'état atomique et sur l'état photonique. D'autre part, ces états "habillés" sont deux fois dégénérés du fait de la dégénérescence de spin d'après le principe de Pauli. Nous remarquons que les états propres $|\pm, m\rangle$ mélangent un état "(atome excité + m photons)" avec un état "(atome non excité + $(m + 1)$ photons)".

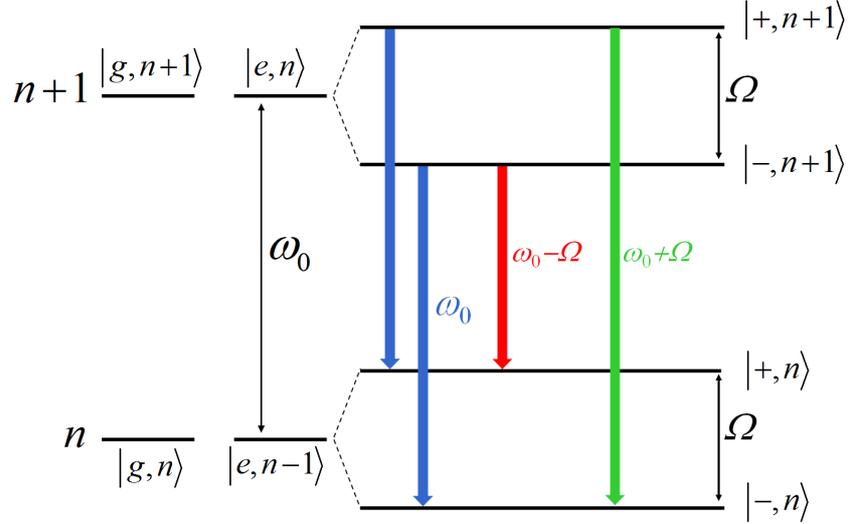


FIGURE A.1 – Schéma des niveaux énergétiques et des différentes transitions optiques d'un système à deux niveaux dans le régime de forte puissance d'excitation.

Si n est le nombre moyen de photons du système (n est proportionnel à la puissance d'excitation), parmi tous les états propres $|\pm, m\rangle$ ($m \in \mathbb{N}$) donnés par l'équation (A.81), seuls les états qui ont une projection non nulle sur l'état $|n\rangle$ à n photons sont peuplés. Autrement dit, les transitions optiques ne concernent que quatre états propres, à savoir : $|\pm, n\rangle$ et $|\pm, n + 1\rangle$. Ces quatre états propres sont présentés sur la figure A.1 avec les quatre transitions optiques correspondantes. Dans le régime de très fortes puissances d'excitation, nous avons $n \gg 1$, donc $\Omega_n \approx \Omega_{n+1} \equiv \Omega$. Par conséquent, les deux transitions $|+, n + 1\rangle \rightarrow |+, n\rangle$ et $|-, n + 1\rangle \rightarrow |-, n\rangle$ sont dégénérées. Alors, le spectre d'émission résonnante est composé de trois raies, où la raie centrale correspond aux deux transitions optiques dégénérées à la pulsation ω_0 tandis que chaque raie secondaire correspond à une seule transition optique à $\omega_0 \pm \Omega$. Il s'agit du *triplet de Mollow* du spectre d'émission résonnante dans la limite des très fortes puissances.

Annexe B

Mesures de la fonction de corrélation de premier ordre et spectres d'émission résonnante

Cette annexe présente la série complète de sept mesures de $g^{(1)}(\tau)$ réalisée sur QD1 à 10K. Il s'agit des résultats dont trois mesures sont présentés dans la section 3.2.5.b du chapitre 3.

Sommaire

B.1 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$	189
B.2 Spectres d'émission résonnante	190

B.1 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$

La figure B.1 présente une série de mesures de $g^{(1)}(\tau)$ réalisé sur QD1 à 10K à sept puissances d'excitation résonnante différentes. Les données sont extraites des interférogrammes de Michelson correspondant à chaque puissance d'excitation. En fait, le contraste $C(\tau)$ d'une interférogramme n'est pas égale mais proportionnel à la fonction $g^{(1)}(\tau)$ ¹. Alors nous avons un coefficient ajustable pour passer de $C(\tau)$ à $g^{(1)}(\tau)$.

Les données sont ajustées par l'équation :

1. Nous avons plutôt $C(\tau) \propto |g^{(1)}(\tau)|$ avec $g^{(1)}(\tau) = e^{i\omega_0\tau} |g^{(1)}(\tau)|$ (voir section 2.3.1 du chapitre 2). Cependant, nous considérons le désaccord $\omega - \omega_0$ comme variable du spectre d'émission, ce qui est équivalent à déplacer l'origine de ω à ω_0 . Après tel changement de variable, nous avons donc $g^{(1)}(\tau) = |g^{(1)}(\tau)|$.

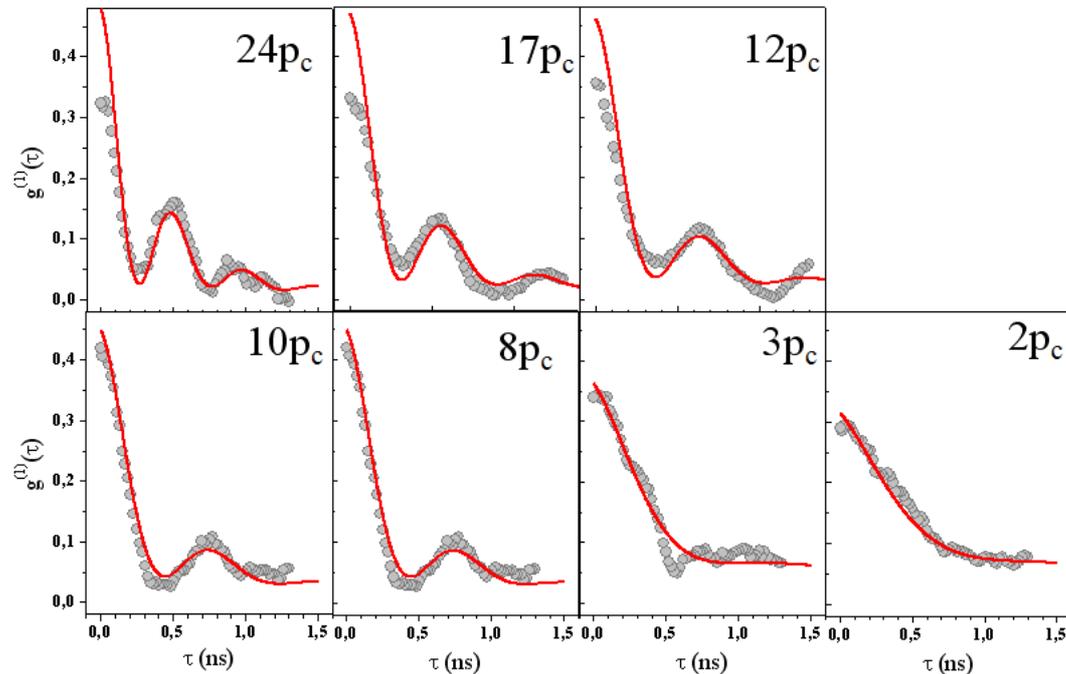


FIGURE B.1 – Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ à sept puissances d'excitation différentes.

$$\begin{aligned}
 g^{(1)}(\tau) &= |g^{(1)}(\tau)| \quad \text{en prenant l'origine } \omega = 0 \text{ à } \omega_0 \\
 &= \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \left\{ \frac{T_2}{2T_1} e^{-\frac{\tau}{T_L}} + \frac{e^{-\frac{\tau}{T_2}}}{2} + \frac{e^{-\eta\tau}}{2} \left(\tilde{\alpha} \cos \nu\tau + \tilde{\beta} \sin \nu\tau \right) \right\}
 \end{aligned} \tag{B.1}$$

avec :

$$\begin{cases}
 T_1 &= 322 \text{ ps} \\
 T_2 &= 412 \text{ ps} \\
 T_L &= 10 \text{ ns} \\
 \Omega^2 &\text{pour chaque puissance d'excitation est présenté sur la figure B.2}
 \end{cases} \tag{B.2}$$

B.2 Spectres d'émission résonnante

Les spectres d'émission résonnantes correspondant aux sept mesures de $g^{(1)}(\tau)$ précédentes sont obtenus par la transformée de Fourier des courbes d'ajustements théoriques (figure B.3).

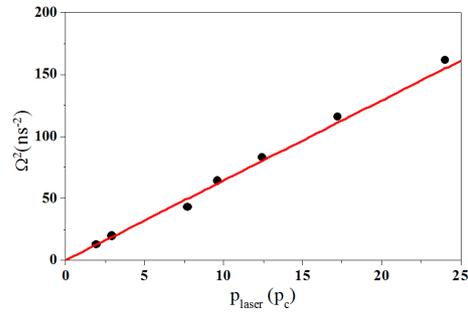


FIGURE B.2 – Courbe d'étalonnage entre les fréquences de Rabi extraites des données de la figure B.1 et les puissances d'excitation.

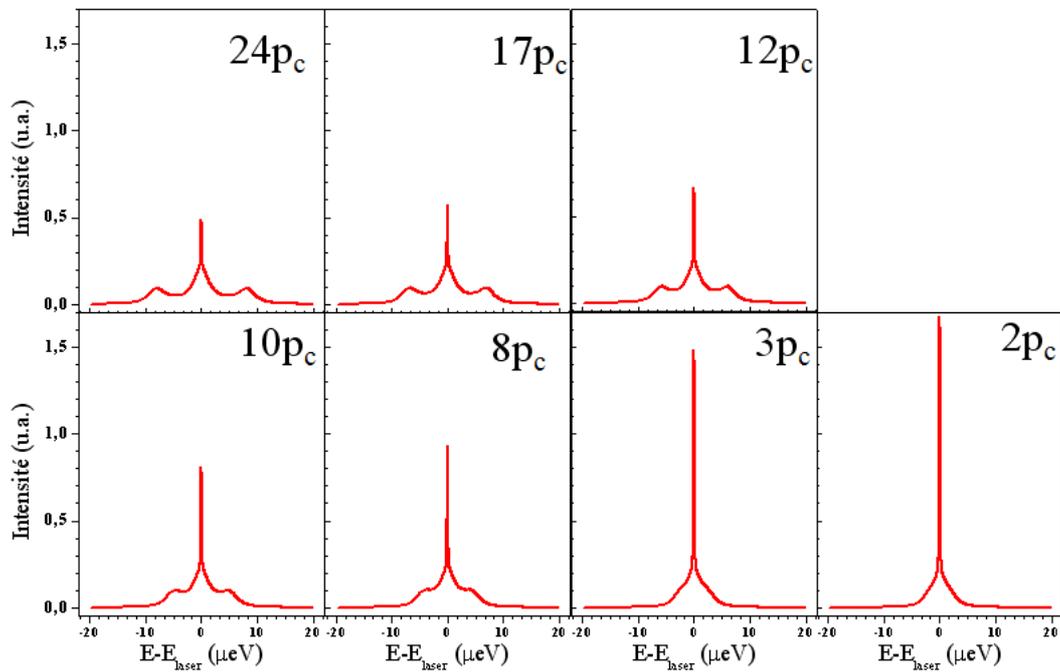


FIGURE B.3 – Spectres d'émission résonnante correspondant aux mesures de $g^{(1)}(\tau)$.

Annexe C

Expérience de la dynamique de charges dans les phases transitoires

Cette annexe décrit l'expérience de la dynamique de charges dans les phases transitoires ON/OFF que nous avons présentée dans la section 4.3.3 du chapitre 4.

Sommaire

C.1 Principe	193
C.2 Montage électronique et optique	194
C.3 Construction d'un histogramme par l'oscilloscope . .	194

C.1 Principe

Le gate optique est un laser HeNe continu à 632 nm modulé par un modulateur acousto-optique (AOM¹). L'entrée de l'AOM est un signal électrique de fréquence 80 MHz dont l'enveloppe est un créneau TTL "tout ou rien". La fréquence 80 MHz correspond à la fréquence de fonctionnement de l'AOM². La diffraction d'ordre 1 du laser est utilisé pour le gate optique. Par conséquent, le gate optique est modulé exactement comme l'enveloppe TTL du signal d'entrée de l'AOM. La phase OFF (sans gate optique) correspond aux intervalles nuls du TTL et la phase ON (avec gate optique) correspond aux intervalles non nuls du TTL.

1. Acousto-Optic Modulator

2. Un modulateur acousto-optique utilise l'effet acousto-optique pour diffracter la lumière par ondes sonores dont les fréquences sont proches des fréquences radio. Il s'agit d'un morceau de verre relié à un oscillateur piézo électrique. Un signal électrique oscillant force le piézo électrique à vibrer, ce qui génère des ondes sonores stationnaires dans le verre. L'indice optique du verre est modifié spatialement par des ondes sonores de façon périodique comme un réseau de diffraction de Bragg.

C.2 Montage électronique et optique

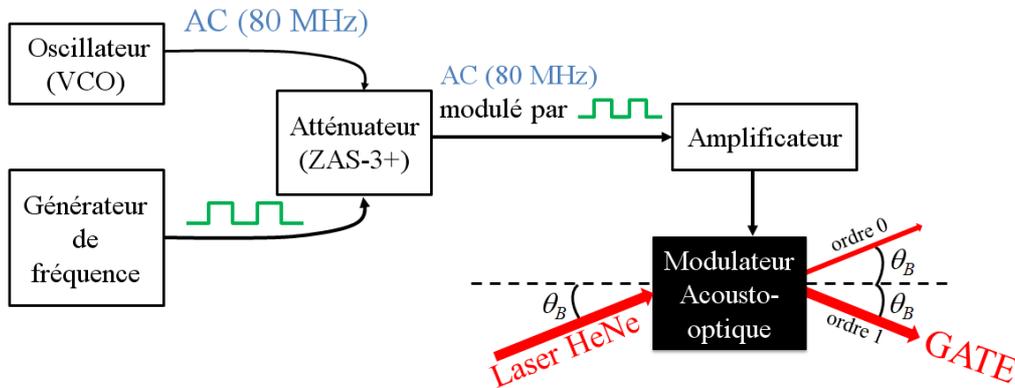


FIGURE C.1 – Réalisation de la modulation du gate optique.

Le montage réalisé pour moduler le gate optique modulé est présenté sur la figure C.1 :

- Un signal électrique de fréquence 80 MHz est généré par un oscillateur VCO (Voltage controlled oscillator). Il est ensuite envoyé à l'entrée d'un atténuateur ZAS-3+ (Coaxial Attenuator Switch)³.
- Un signal TTL de fréquence 400 Hz est généré par un générateur de fréquence. Il est ensuite envoyé à la grille de l'atténuateur.
- A la sortie de l'atténuateur, nous avons un signal électrique de fréquence 80 MHz, modulé par un créneau TTL de fréquence 400 Hz. Ce signal est amplifié par un amplificateur avant d'être envoyé à l'AOM.
- Le laser HeNe est envoyé à l'entrée de l'AOM sous un angle incident qui est égal à l'angle de Bragg, $\theta_B = \frac{\lambda_{laser}}{2\lambda_{son}} \approx 0.35^\circ$, pour qu'un maximum d'intensité soit diffracté dans l'ordre 1⁴.
- A la sortie de l'AOM, le faisceau diffracté d'ordre 1 est choisi pour le gate optique. Il fait un angle $2\theta_B$ par rapport au faisceau non-diffracté (ordre 0).

C.3 Construction d'un histogramme par l'oscilloscope

Nous utilisons un oscilloscope WaveRunner 104MXi-A de la marque LeCroy pour construire un histogramme qui correspond au signal de résonance en fonc-

3. ZAS-3+ est un atténuateur dont l'impédance est contrôlée par une tension de grille

4. Pour le laser HeNe, $\lambda_{laser} = 632nm$. Pour les ondes sonores dans le verre de l'AOM, la vitesse du son est égale à 4200 m/s, ce qui correspond à $\lambda_{son} = 52.5 \mu m$ à la fréquence 80 MHz. Alors $\theta_B = \frac{\lambda_{laser}}{2\lambda_{son}} \approx 0.35^\circ$.

tion du temps. Le signal délivré par la photodiode à avalanche de détection et le signal électrique du créneau TTL sont envoyés vers l'oscilloscope, où le signal TTL joue le rôle de trigger. Chaque photon détecté par la photodiode à avalanche correspond à un événement de l'histogramme. L'abscisse d'un événement est enregistré de la façon suivante :

- Pour la phase OFF, l'abscisse d'un événement est le délai entre le moment de la détection du photon correspondant et le moment où le signal TTL a une pente négatif (i.e. le moment où le gate optique est "éteint").
- Pour la phase ON, l'abscisse d'un événement est le délai entre le moment de la détection du photon correspondant et le moment où le signal TTL a une pente positive (i.e. le moment où le gate optique est "allumé")

La modulation du gate optique n'est pas un parfait TTL comme le signal TTL généré par le générateur de fréquence à cause de la réponse électronique de l'atténuateur. Par conséquent, le gate optique n'est pas parfaitement modulé mais il a un certains temps de réponse dans les deux phases. Pour obtenir la réponse temporelle de la modulation TTL du gate optique, la photodiode à avalanche est utilisée pour mesurer directement le gate optique au lieu du signal de l'émission résonnante. Les résultats (figure 4.22, page 147) montrent que la résolution temporelle est de l'ordre de $2 \mu s$.

Bibliographie

- [1] J.Y. Marzin, J.M. Gerard, A. Izrael, D. Barrier, and G. Bastard. Photoluminescence of single InAs Quantum Dots obtained by Self-Organized growth on GaAs. *Physical Review Letters*, 73 :5, 1994.
- [2] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters*, 39 :391–695, 1977.
- [3] T. A. Johnson, E. Urban, T. Henage, L. Isenhower, D. D. Yavuz, T. G. Walker, , and M. Saffman. Rabi oscillations between ground and rydberg states with dipole-dipole atomic interactions. *Physical Review Letters*, 100 :113003, 2008.
- [4] M. Brune, F. Schmidt-Kaler, A. Maali, J. Dreyer, E. Hagley, J. M. Raimond, and S. Haroche. Quantum rabi oscillation : A direct test of field quantization in a cavity. *Physical Review Letters*, 76 :1800–1803, 1996.
- [5] F. De Martini, G. Innocenti, G. R. Jacobovitz, and P. Mataloni. Anomalous spontaneous emission time in a microscopic optical cavity. *Physical Review Letters*, 59 :2955–2958, 1987.
- [6] R. J. Thompson, G. Rempe, and H. J. Kimble. Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity. *Physical Review Letters*, 68 :1132–1135, 1992.
- [7] 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 :2282, 2000.
- [8] C.Cohen-Tannoudji. *Atoms in electromagnetic fields (second edition)*. World Scientific, 2004.
- [9] H. Kamada, H. Gotoh, J. Temmyo, T. Takagahara, and H. Ando. Exciton Rabi oscillation in a Single Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 87 :246401, 2001.
- [10] 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 :133603, 2001.
- [11] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter. Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature*, 418 :614, 2002.

- [12] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes Jr, and C. K. Shih. Interplay of Rabi Oscillation and Quantum Interference in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 88 :087401, 2002.
- [13] E. M. Purcell. Proceedings of the american physical society. *Physical Review*, 69 :674, 1946.
- [14] E. Moreau, I. Robert, J. M. Gérard, I. Abram, L. Manin, and V. Thierry-Mieg. Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. *Applied Physics Letters*, 79 :2865, 2001.
- [15] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atatüre, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff, and A. Imamoglu. Deterministic coupling of single quantum dots to single nanocavity modes. *Science*, 308 :1158, 2005.
- [16] Sergio M. Dutra. *Cavity Quantum Electrodynamics - The Strange Theory of Light in a Box*. Wiley, 2005.
- [17] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. Strong coupling in a single quantum dot semiconductor microcavity system. *Nature*, 432 :197, 2004.
- [18] K. Hennessy, A. Badolato, M. Winger, D. Gerace, M. Atatüre, S. Gulde, S. Fält, E. L. Hu, and A. Imamoglu. Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot cavity system. *Nature*, 445 :896, 2007.
- [19] Charles H. Bennett and David P. DiVincenzo. Quantum information and computation. *Nature*, 404 :247–255, 2000.
- [20] A. K. Ekert. Quantum cryptography based on Bell’s theorem. *Physical Review Letters*, 67 :661, 1991.
- [21] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden. Quantum cryptography. *Review of modern physics*, 74 :145, 2002.
- [22] M. Larqué, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Entangling single photons on a beamsplitter. *The European Physical Journal D*, 47 :119–125, 2008.
- [23] A. Berthelot. *Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques*. Thèse de l’université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2008.
- [24] C. Kammerer. *Spectroscopie Optique de boîtes quantiques uniques : Effets de l’environnement*. Thèse de l’université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2008.
- [25] I. Favero. *Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs*. Thèse de l’université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2005.
- [26] 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 :187402, 2007.

- [27] 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 :073301, 2008.
- [28] 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 :167402, 2009.
- [29] A. Nick Vamivakas, Yong Zhao, Chao-Yang Lu, and Mete Atatüre. Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence. *Nature Physics*, 5 :198, 2009.
- [30] A. Reinhard, T. Volz, M. Winger, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu, and A. Imamoglu. Strongly correlated photons on a chip. *arXiv :1108.3053v1 [cond-mat.mes-hall]*.
- [31] M. Ravaro, A. Enderlin, C. Tonin, V. Voliotis, R. Grousson, A. Lemaitre, and A. Martinez. Decoherence of a resonantly driven exciton in a single quantum dot. *Journal of Physics : Conference Series*, 245 :012053, 2010.
- [32] A. Muller. Communication privée.
- [33] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs, and G. Cassabois. Optically-gated resonant emission in single quantum dots. *arXiv :1109.4304v1 [cond-mat.mes-hall]*.
- [34] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Solid State Physics*. HRW International Editions, 1976.
- [35] P. Y. Yu and M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, 1999.
- [36] P. Michler. *Single Quantum Dots - Fundamentals, Applications and New Concepts*. Springer, 2003.
- [37] I. M. Stransky and L. von Krastanov. *Akad. Wis. Lit. Abh. Math. Naturwiss. Kl. I Ib*, 146 :797, 1939.
- [38] A. P. Alivisatos. Semiconductor Clusters, Nanocrystals, and Quantum dots. *Science*, 271 :933, 1996.
- [39] L. Goldenstein, G. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, and G. Le Roux. Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters*, 47 :1099, 1985.
- [40] Arno Hartmann, Yann Ducommun, Laurent Loubies, Klaus Leifer, and Eli Kapon. Structure and photoluminescence of single AlGaAs/GaAs quantum dots grown in inverted tetrahedral pyramids. *Applied Physics Letters*, 73 :16, 1998.
- [41] P. Atkinson, S. Kiravittaya, M. Benyoucef, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Site-controlled growth and luminescence of InAs quantum dots using in situ Ga-assisted deoxidation of patterned substrates. *Applied Physics Letters*, 93 :101908, 2008.

- [42] L. O. Mereni, V. Dimastrodonato, R. J. Young, and E. Pelucchi. A site-controlled quantum dot system offering both high uniformity and spectral purity. *Applied Physics Letters*, 94 :223121, 2009.
- [43] P.Lodahl, A.F.V.Driel, I.S. Nikolaev, A.Irman, K.Overgaag, D.Vanmaekelbergh, and W.L. Vos. Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals. *Nature*, 430 :654–657, 2004.
- [44] J. P. Reithmaier, G. Sek, A.Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel. Strong coupling in a single quantum dot - semiconductor microcavity system. *Nature*, 432 :197, 2004.
- [45] A. Zrenner, E. Beham, S. Stufler, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter. Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature*, 418 :613, 2002.
- [46] M. Kroner, A. O. Govorov, S. Remi, B. Biedermann, S. Seidl, A. Badolato, P. M. Petroff, W. Zhang, R. Barbour, B. D. Gerardot, R. J. Warburton, and K. Karra. The nonlinear Fano effect. *Nature*, 451 :311–314, 2008.
- [47] D.Talapin, A.Rogach, A.Kornowski, M.Haase, and H.Weller. Quantum size effect in semiconductor microcrystals. *Solid State Communications*, 56 :921–924, 1985.
- [48] D.Talapin, A.Rogach, A.Kornowski, M.Haase, and H.Weller. Highly luminescent monodisperse CdSe and CdSe/ZnS nanocrystals synthesized in a hexadecylaminetriethylphosphine oxide-triethylphosphine mixture. *Nano Letters*, 1 :207–211, 2001.
- [49] P.Michler, A.Imamoglu, M.D.Mason, P.J.Carson, G.F.Strouse, and S.K.Buratto. Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature.
- [50] S.Coe nad W.K.Woo, M.G.Bawendi, and V.Bulovic. Electroluminescence from single monilayers of nanocrystals in molecular organic devices.
- [51] M.E.Akerman, W.C.W.Chan, P.Laakkonen, S.N.Bhatia, and Ruoslahti. Nanocrystal targeting in vivo.
- [52] S. Kiravittaya, R. Songmuang, A. Rastelli, H. Heidemeyer, and O. G. Schmidt. Multi-scale ordering of self-assembled InAs/GaAs(001) quantum dots. *Nanoscale Research Letter*, 1 :1–10, 2006.
- [53] D.Leonard, M.Krishnamurthy, C.M.Reaves, S.P.Denbaars, and P.M.Petroff. Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces. *Applied Physics Letters*, 63 :3203, 1993.
- [54] P.Michler. *Single Semiconductor Quantum Dots*. Springer, 2009.
- [55] I.C.Robin, R.André, C.Bougerol, T.Aichele, and S.Tatarenkoa. Elastic and surface energies : Two key parameters for CdSe quantum dot formation. *Applied Physics Letters*, 88 :233103, 2006.

- [56] J.M.Gérard, J.B.Génin, J.Lefebvre, J.M.Moison, N.Lebouché, and F.Barthe. Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxed. *Journal of Crystal Growth*, 150 :351, 1995.
- [57] G.S.Solomon, J.A.Trezza, and Jr.J.S.Harris. Effects of monolayer coverage, flux ratio, and growth rate on the island density of InAs islands on GaAs. *Applied Physics Letters*, 66 :3161, 1995.
- [58] A. Rastelli, M. Kummer, and H. von Känel. Reversible shape evolution of Ge islands on Si(001). *Physical Review Letters*, 87 :25, 2001.
- [59] L. Wang, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Structural and optical properties of InGaAs/GaAs quantum dots treated by partial capping and annealing. *Journal of Applied Physics*, 100 :064313, 2006.
- [60] T.B.Badher. Eight-band k.p model of strained zinc-blende crystals. *Physical Review B*, 41 :11992, 1990.
- [61] G.Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1992.
- [62] A.Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couples verticalement*. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002.
- [63] Y.Toda. Efficient carrier relaxation mechanism in inGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states. *Physical Review Letters*, 82 :20, 1999.
- [64] P. Harrison. *Quantum Wells, Wires and Dots*. Wiley, 2005.
- [65] A.Schliwa, M.Winkelkemper, and D.Bimberg. Few particle energies versus geometry and composition of inGaAs/GaAs self-organized quantum dots. *Physical Review B*, 42 :075443, 2009.
- [66] S.Rodt, A.Schliwa, K.Pötschke, F.Guffarth, and D.Bimberg. Correlation of structural and few-particle properties of self-organized InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 71 :155325, 2005.
- [67] M.E.Warea, A.S.Brackera, E.Stinaffa, D.Gammona, D.Gershoni, and V.L.Jorenev. Polarization spectroscopy of positive and negative trions in an InAs quantum dot. *Physica E*, 26 :55, 2005.
- [68] B.Urbaszek, R.J.Warburton, K.Karrai, B.D.Gerardot, P.M.Petroff, and J.M.Garcia. Fine structure of highly charged excitons in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 90 :247403, 2003.
- [69] R.M.Thompson, R.M.Stevenson, A.J.Shields, I.Farrer, C.J.Lobo, D.A.Ritchie, M.L.Leadbeater, and M.Pepper. Single-photon emission from exciton complexes in individual quantum dots. *Physical Review B*, 64 :201302, 2001.
- [70] M.E.Ware, E.A.Stinaff, D.Gammon, M.F.Doty, A.S.Bracker, D.Gershoni, V.L.Korenev, S.C.Badescu, Y.Lyanda-Geller, and T.L.Reinecke. Polarized

- fine structure in the photoluminescence excitation spectrum of a negatively charged quantum dot. *Physical Review Letters*, 95 :177403, 2005.
- [71] M.Ediger, P.A.Dalgarno, J.M.Smith, V.D.Gerardot, R.J.Warburton, K.Karrai, and P.M.Petroff. Controlled generation of neutral, negatively-charged and positively-charged excitons in the same single quantum dot. *Applied Physics Letters*, 86 :211909, 2005.
- [72] M.Lomascolo, A.Vergine, T.K.Johal, R.Rinaldi, A.Passaseo, R.Cingolani, S.Patanè, M.Labardi, M.Allegrini, F.Troiani, and E.Molinari. Dominance of charged excitons in single-quantum-dot photoluminescence spectra. *Physical Review B*, 66 :041302, 2002.
- [73] F.Findeis, M.Baier, E.Beham, A.Zrenner, and G.Abstreiter. Photocurrent and photoluminescence of a single self-assembled quantum dot in electric fields. *Applied Physics Letters*, 78 :2958, 2001.
- [74] R.Seguin, A.Schliwa, T.D.Germann, S.Rodt, K.Pötschke, A.Strittmatter, U.W.Pohl, D.Bimberg, M.Winkelnkemper, T.Hammerschmidt, and P.Kratze. Control of fine-structure splitting and excitonic binding energies in selected individual InAs/GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 89 :263109, 2006.
- [75] J.Gomis-Bresco, G.Munoz-Matutano, J.Martinez-Pastor, B.Aliñ, L.Seravalli, P.Frigeri, G.Trevisi, and S.Franchi. Random population model to explain the recombination dynamics in single InAs/GaAs quantum dots under selective optical pumping. *New Journal of Physics*, 13 :023022, 2011.
- [76] V.D.Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, 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 :1780, 1999.
- [77] G.L.bir and G.E.Pikus. *Symmetry and Strain-induced Effects in Semiconductors*. John Wiley and Sons, 1974.
- [78] 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 :045331, 2007.
- [79] A.V.Koudinov, I.A.Akimov, Y.G.Kusrayev, and F.Henneberger. Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots. *Physical Review B*, 70 :241305, 2004.
- [80] D. N. Krizhanovskii, A. Ebbens, A. I. Tartakovskii, F. Pulizzi, T. Wright1, M. S. Skolnick, and M. Hopkinson. Individual neutral and charged in-GaAs/GaAs quantum dots with strong in-plane optical anisotropy. *Physical Review B*, 72 :161312, 2005.
- [81] S.Ohno, S.Adachi, R.Kaji, S.Muto, and H.Sassakura. Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 98 :161912, 2011.

- [82] R.Ferreira and G.Bastard. Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots. *Applied Physics Letters*, 74 :2818, 1999.
- [83] I.Magnusdottir, A.V.Uskov, S.Bischoff, B.Tromborg, and J.Mork. One- and two-phonon capture processes in quantum dots. *Physical Review B*, 92 :5982, 2002.
- [84] I.Magnusdottir, S.Bischoff, A.V.Uskov, and J.Mork. Geometry dependence of Auger carrier capture rates into cone-shaped self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 67 :205326, 2003.
- [85] A.V.Uskov, J.McInerney, F.Adler, H.Schweizer, and M.H.Pilkuhn. Auger carrier capture kinetics in self-assembled quantum dot structures. *Applied Physics Letters*, 72 :58, 1998.
- [86] R. Ferreira O. Verzelen and G. Bastard. Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 62 :4809, 2000.
- [87] T. Grange, R. Ferreira, and G. Bastard. Polaron relaxation in self-assembled quantum dots : Breakdown of the semiclassical model. *Physical Review B*, 76 :241304, 2007.
- [88] J.Siegert and S.Marcinkevicius. Carrier dynamics in modulation-doped InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 72 :085316, 2005.
- [89] L.Zhang, Thomas F.Bogges, K.Gundogdu, Michael E.Flatté, D.G.Deppe, C.Cao, and O.B.Shchekin. Excited-state dynamics and carrier capture in InGaAs/GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 79 :3320, 2001.
- [90] Z.M.Wang. *Self-Assembled Quantum Dots*. Spring, 2008.
- [91] T.Piwonski, I.O'Driscoll, J.Houlihan, G.Huyet, R.J.Manning, and A.V.Uskov. Carrier capture dynamics of InAs/GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 90 :122108, 2007.
- [92] G. Cassabois, C. Kammerer, R. Sopracase, C. Voisin, C. Delalande, and Ph. Roussignol. Disorder-induced photoluminescence up-conversion in InAs/GaAs quantum-dot samples. *Journal of Applied Physics*, 91 :5489, 2002.
- [93] S.Raymond, K.Hinzer, and S.Fafard. Experimental determination of Auger capture coefficients in self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 61 :16331, 2000.
- [94] C.Fabre, G.Gryndberg, and A.Aspect. *Introduction aux lasers et l'optique quantique*. Ellipses, 1997.
- [95] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 88 :146803, 2002.
- [96] O.Verzelen. *Interaction électron-phonon LO dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs*. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002.
- [97] F. Vallée and F. Bogani. Coherent time-resolved investigation of LO-phonon dynamics in GaAs. *Physical Review B*, 43 :12049, 1991.

- [98] F. Vallée. Time-resolved investigation of coherent LO-phonon relaxation in iii-v semiconductors. *Physical Review B*, 49 :2460, 1993.
- [99] A.Jankovich. *Etats électroniques des boîtes quantiques de semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin*. Thèse de l'université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004.
- [100] H. D. Robinson and B. B. Goldberg. Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 61 :8, 200.
- [101] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Few-particle effects in single CdTe quantum dots. *Physical Review B*, 65 :121314, 2002.
- [102] A.Berthelot, I.Favero, G.Cassabois, C.Voisin, C.Delalande, Ph.Roussignol, R.Ferreira, and J.M.Gérard. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature Physics*, 2 :11, 2006.
- [103] S. E. Shore, J-P. Ansermet, and C. P. Slichter. Nuclear-Magnetic-Resonance Study of the Bonding and Diffusion of CO Chemisorbed on Pd. *Physical Review Letters*, 9 :953, 1987.
- [104] I. Favero, A. Berthelot, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, and J.M.Gérard. Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in quantum dots :An effect of the fluctuating environment. *Physical Review B*, 75 :073308, 2007.
- [105] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J. P. Reithmaier, A.Forchel, and J.M.Gérard. Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects. *Physical Review B*, 66 :041306, 2002.
- [106] 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, 1996.
- [107] U. Bockelmann and G. Bastard. Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. *Physical Review B*, 42 :14, 1990.
- [108] H. Benisty, C. M. Sotomayor-Torres, and C. Weisbuch. Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems. *Physical Review B*, 44 :19, 1991.
- [109] U. Bockelmann and G. Bastard. Exciton relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 48 :23, 1993.
- [110] G.M.Matutano, J.Gomisa, B.Alén, J.M.Pastora, L.Seravallic, P. Frigeric, and S. Franchi. Exciton, biexciton and trion recombination dynamics in a single quantum dot under selective optical pumping. *Physica E*, 40 :2100, 2008.

- [111] B.R. Mollow. Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems. *Physical Review*, 188 :1969, 1969.
- [112] R.Loudon. *The Quantum Theory of Light (third edition)*. Oxford University Press, 2000.
- [113] E.B.Flagg, A. Muller, J.W.Robertson, S.Founta, D.G.Deppe, J.Zhang, M.Xiao, W.Ma, G.J.Salamo, and C.K.Shih. Resonantly driven coherent oscillations in a solid-state quantum emitter. *Nature Physics*, 5 :203–207, 2009.
- [114] A.V.Khaetskii and Y.V.Nazarov. Spin relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 61 :12639, 2000.
- [115] A.V.Khaetskii and Y.V.Nazarov. Spin-flip transitions between Zeeman sublevels in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 64 :125316, 2001.
- [116] L.M.Woods, T.L.Reinecke, and Y.Lyanda-Geller. Spin relaxation in quantum dots. *Physical Review B*, 66 :161318, 2002.
- [117] E.Tsitsishvili, R.V.Baltz, and H.Kalt. Exciton spin relaxation in single semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 67 :205330, 2003.
- [118] M.Paillard, X.Marie, P.Renucci, T.Amand, A.Jbeli, and J.M.G erard. Spin relaxation quenching in semiconductor quantum dots. *Physical Review Letters*, 86 :1634, 2001.
- [119] V.Savona. *Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells*. Summerschool pf Carg ese, 1998.
- [120] K.J.Vahala. Optical microcavities. *Nature*, 424 :839, 2003.
- [121] G. Ramon, U. Mizrahi, N. Akopian, S. Braitbart, D. Gershoni, T. L. Reinecke, B. Gerardot, and P. M. Petroff. Emission characteristics of quantum dots in planar microcavities. *Physical Review B*, 73 :205330, 2005.
- [122] H. Benisty, H. De Neve, and C. Weisbuch. Impact of Planar Microcavity Effects on Light Extraction   Part i : Basic Concepts and Analytical Trends. *IEEE Journal of quantum electronics*, 34 :1612, 1998.
- [123] T. Mano, K. Watanabe, S. Tsukamoto, H. Fujioka, M. Oshima, and N. Koguchi. Fabrication of InGaAs quantum dots on GaAs (001) by droplet epitaxy. *Journal of Crystal Growth*, 209 :504–508, 2000.
- [124] M. Hayne, O.Razinkova, and S. Bersier. Optically induced charging effects in self-assembled GaSb/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 70 :081302(R), 2004.
- [125] M. Grundmann and D.Bimberg. Theory of random population for quantum dots. *Physical Review B*, 55 :9740, 1997.
- [126] M. Abbarchi, C.Mastrandrea, T.Kuroda, T.Mano, A.Vinattieri, K.Sakoda, and M.Gurioli. Poissonian statistics of excitonic complexes in quantum dots. *Journal of Applied Physics*, 106 :053504, 2009.

- [127] R. Oulton, J. J. Finley, A. I. Tartakovskii, D. J. Mowbray, M. S. Skolnick, M. Hopkinson, A. Vasanelli, R. Ferreira, and G. Bastard. Continuum transitions and phonon coupling in single self-assembled stranski-krastanow quantum dots. *Physical Review B*, 68 :235301, 2003.
- [128] 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 :081304, 2010.
- [129] M. O.Scully and M.S.Zubairy. *Quantum Optics*. Cambridge University Press, 2001.
- [130] J.R.Senitzky. Radiation-Reaction and Vacuum-Field Effects in Heisenberg-Picture Quantum Electrodynamics. *Physical Review Letters*, 31 :955, 1973.
- [131] P.W.Milonni, J.R.Ackerhalt, and W.A.Smith. Interpretation of Radiative Corrections in Spontaneous Emission. *Physical Review Letters*, 31 :958, 1973.
- [132] C.Cohen-Tannoudji, J.Dupont-Roc, and G.Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. CNRS, 1988.
- [133] H.Paul. Photon antibunching. *Reviews of Modern Physics*, 54 :1061, 1982.
- [134] C.Couteau. *Vers une Source de Photons Uniques Indiscernables Produits par des boîtes Quantiques Semiconductrices II-VI*. Thèse de l'université Joseph Fourier - Grenoble 1, 2005.
- [135] H.Walther. Single atom experiments in cavities and traps. *Proceedings of the Royal Society A*, 454 :431–445, 1998.
- [136] M. Paillard, X. Marie, E. Vanelle, T. Amand, V. K. Kalevich, A. R. Kovsh, A. E. Zhukov, and V. M. Ustinov. Time-resolved photoluminescence in self-assembled InAs/GaAs quantum dots under strictly resonant excitation. *Applied Physics Letters*, 76 :1, 2000.
- [137] V. Stavarache, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Schwab, D. R. Yakovlev, R. Oulton, and M. Bayer. Control of quantum dot excitons by lateral electric fields. *Applied Physics Letters*, 89 :123105, 2006.
- [138] A.Dousse, J.Suffczynski, A.Beveratos, O.Krebs, A.Lemaître, I. Sagnes, J.Bloch, P. Voisin, and P.Senellart. Ultrabright source of entangled photon pairs. *Nature*, 466 :217–220, 2010.
- [139] J.Claudon, J.Bleuse, N.S. Malik, M. Bazin, P.Jaffrennou, N.Gregersen, C.Sauvan, P. Lalanne, and J.Gérard. A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire. *Nature Photonics*, 4 :174–177, 2010.
- [140] T.Belhadji, T.Amand, A.kunold, C.-M.Simon, T.Kuroda, M.Abbarchi, T.Mano, K.Sakoda, S.Kunz, X.Marie, and B.Urbaszek. Impact of heavy hole-light hole coupling on optical selection rules in GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 97 :051111, 2010.

- [141] R.Ferreira. Exchange coupling and polarization relaxation in self-assembled quantum dots. *Physica E*, 13 :216–219, 2002.
- [142] K.Kowalik, O.Krebs, A.Lemaître, S.Laurent, P.Senellart, P.Voisin, and J.A.Gaj. Influence of an in-plane electric field on exciton fine structure in InAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Applied Physics Letters*, 86 :041907, 2005.
- [143] G.Medeiros, D.Leonard, and P.Petroff. Electron and hole energy levels in InAs self-assembled quantum dots. *Applied Physics Letters*, 66 :1767, 1995.
- [144] M.Benyoucef, H.S.Lee, J.Gabel, T.W.Kim and H.L.Park and A.Rastelli, and O.G.Schimidt. Wavelength tunable triggered single-photon source from a single CdTe quantum dot on silicon substrate. *Nano Letters*, 9 :304–307, 2009.
- [145] A.Faraon, D.Englund, I.Fushman, K.Vuckovic, N.Stoltz, and P.Petroff. Local quantum dot tuning on photonic crystal chips. *Applied Physics Letters*, 90 :213110, 2007.
- [146] G. Cassabois. *Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs*. Habilitation à diriger des recherches, 2006.
- [147] R. Eccleston, C. C. Phillips, P. Hawrylak, R. T. Harley, and S. R. Andrews. Influence of degenerate free carriers on radiative lifetimes in GaAs quantum wells. *Physical Review B*, 47 :7170, 1991.
- [148] H. C. Casey and F. Stern. Concentration-dependent absorption and spontaneous emission of heavily doped GaAs. *Journal of Applied Physics*, 47 :631, 1976.
- [149] Zhiliang Yuan, Beata E. Kardynal, R. Mark Stevenson, Andrew J. Shields, Charlene J. Lobo, Ken Cooper, Neil S. Beattie, David A. Ritchie², and Michael Pepper. Electrically Driven Single-Photon Source. *Science*, 295 :102, 2002.
- [150] V.Zwiller, H.Blom, P.Jonsson, N.Panev, S.Jeppesen, T.Tsegaye, E.Goobar, M.Pistol, L. Samuelson, and G.Björk. Single quantum dots emit single photons at a time : Antibunching experiments. *Applied Physics Letters*, 78 :2476, 2001.
- [151] G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, M. Richard, S. Tatarenko, K. Kheng, and J.-Ph. Poizat. Subnanosecond spectral diffusion of a single quantum dot in a nanowire. *Physical Review B*, 84 :041405, 2011.
- [152] G. Sallen, A. Tribu, T. Aichele, R. André, L. Besombes, C. Bougerol, M. Richard, S. Tatarenko, K. Kheng, and J.-Ph. Poizat. Subnanosecond spectral diffusion measurement using photon correlation. *Nature Photonics*, 4 :696, 2010.

-
- [153] C.Santori, D.Fattal, J.Vuckovic, G.S.Solomon, E.Waks, and Y.Yamamoto. Submicrosecond correlation in photoluminescence from InAs quantum dots. *Physical Review B*, 69 :205324, 2004.
- [154] J. T. Hoffges, H. W. Baldauf, W. Lange, and H. Walther. Heterodyne measurement of the resonance fluorescence of a single ion. *Journal of Modern Optics*, 44 :1999, 1997.
- [155] S. Gerber, D. Rotter, L. Slodicka, J. Eschner, H. J. Carmichael, and R. Blatt. Intensity-Field Correlation of Single-Atom Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters*, 102 :183601, 2009.
- [156] A. I. Lvovsky, H. Hansen, T. Aichele, O. Benson, J. Mlynek, and S. Schiller. Quantum State Reconstruction of the Single-Photon Fock State. *Physical Review Letters*, 87 :050402, 2001.
- [157] A. Zavatta, S. Viciani, and M. Bellini. Tomographic reconstruction of the single-photon Fock state by high-frequency homodyne detection. *Physical Review A*, 70 :053821, 2004.