



HAL
open science

Manipulation cohérente de l'émission résonnante d'une boîte quantique unique

Catherine Tonin

► **To cite this version:**

Catherine Tonin. Manipulation cohérente de l'émission résonnante d'une boîte quantique unique. Physique Quantique [quant-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012. Français. NNT : 2012PAO66477 . tel-00839316

HAL Id: tel-00839316

<https://theses.hal.science/tel-00839316v1>

Submitted on 27 Jun 2013

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

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

Université Pierre et Marie Curie - Paris VI
ED 397 Physique et chimie des matériaux

THESE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Pierre et Marie Curie

présentée par

Catherine TONIN

**Manipulation cohérente de l'émission résonnante
d'une boîte quantique unique**

Soutenue publiquement le 21 septembre 2012 devant le jury composé de :

M.	Gabriel BESTER	<i>Examineur</i>
M.	Roger GROUSSON	<i>Membre invité</i>
M.	Kuntheak KHENG	<i>Rapporteur</i>
Mme.	Isabelle ROBERT-PHILIP	<i>Rapporteur</i>
M.	Philippe ROUSSIGNOL	<i>Examineur</i>
M.	Nicolas TREPS	<i>Examineur</i>
Mme.	Valia VOLIOTIS	<i>Directrice de thèse</i>

Sommaire

Introduction	7
1 Boîtes quantiques semi-conductrices	11
1.1 Hétéro-structures semi-conductrices	12
1.2 Croissance de boîtes quantiques	15
1.3 Propriétés électroniques des semi-conducteurs	18
1.3.1 Structure de bande dans le matériau massif, méthode $k.p$	18
1.3.1.a Fonctions propres : les fonctions de Bloch	18
1.3.1.b Énergies propres et masses effectives	19
1.3.2 Fonction enveloppe, états propres d'un puits quantique	25
1.3.3 États propres d'une boîte quantique	26
1.4 Propriétés optiques des semi-conducteurs	28
1.4.1 Transitions optiques	28
1.4.2 Absorption	31
1.4.3 Photoluminescence	33
1.5 Excitons dans les semi-conducteurs	37
1.5.1 Le concept d'exciton	37
1.5.2 Correspondance électron de valence - trou	38
1.5.3 Énergie de l'exciton	40
1.5.3.a États propres excitoniques sans interaction d'échange	42
1.5.3.b Conséquences de l'interaction d'échange dans un système isotrope	43
1.5.4 Boîte anisotrope, structure fine de l'exciton	47
1.5.5 Mise en évidence expérimentale	52
2 Montage expérimental	57
2.1 Optique guidée	58
2.1.1 Principe	59
2.1.2 Guides d'onde dans nos échantillons	64

2.2	Dispositif expérimental	73
2.2.1	Schéma général	73
2.2.2	Dispositif d'excitation	75
2.2.3	Ligne à retard	77
2.2.4	Dispositif de détection	83
2.2.5	Interféromètre de Fabry-Pérot	86
2.2.6	Cryostat	92
2.2.7	Dispositif Hanbury Brown et Twiss	94
3	Interaction matière - rayonnement	97
3.1	Interaction d'un système à deux niveaux et d'un champ électromagnétique classique	98
3.1.1	Hamiltonien d'interaction $\hat{H}_{int}(t)$	99
3.1.2	Transitions entre les deux niveaux sous l'effet du champ classique, oscillations de Rabi	102
3.2	Formalisme de la matrice densité	107
3.2.1	État pur et mélange statistique	107
3.2.2	Opérateur densité	108
3.2.3	Équation de Liouville - Von Neumann	109
3.3	Équations de Bloch optiques	109
3.3.1	Évolution temporelle de l'état d'un système à deux niveaux soumis à un champ extérieur	109
3.3.2	Approximation séculaire et approximation du champ tournant	111
3.4	Résolution des équations de Bloch	113
3.4.1	Solutions stationnaires	114
3.4.2	Solutions générales à la résonance	115
3.5	Régime impulsionnel	116
3.6	Résultats expérimentaux	121
3.6.1	Oscillations de Rabi en fonction de l'aire des impulsions	121
3.6.2	Résultats expérimentaux	122
3.6.3	Amortissement des oscillations de Rabi	126
3.6.3.a	Relaxation des cohérences	127
3.6.3.b	Relaxation des populations	129
3.6.4	Oscillations de Rabi d'un système à trois niveaux	130
3.6.5	Rôle des phonons dans l'amortissement des oscillations de Rabi.	135
4	Constantes de temps caractéristiques	141
4.1	Émission spontanée	142
4.1.1	Approche de Wigner-Weisskopf : durée de vie radiative	143

4.1.2	Relaxation du système par émission spontanée	144
4.2	Mesures directes des temps de relaxation du système à deux niveaux	146
4.2.1	Temps de vie	146
4.2.2	Temps de cohérence	152
4.3	Contrôle cohérent	156
4.3.1	Interaction d'un système à deux niveaux avec deux impulsions successives	156
4.3.1.a	Interaction du système à deux niveaux avec la première impulsion	156
4.3.1.b	Interaction du système à deux niveaux avec la seconde impulsion	158
4.3.1.c	Expression de la luminescence mesurée après l'interaction du système avec les deux impulsions successives	163
4.3.2	Détermination du temps de cohérence	165
4.3.2.a	Principe de la mesure	165
4.3.2.b	Résultats expérimentaux	166
4.3.3	Détermination du temps de vie	171
4.3.3.a	Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi$.	171
4.3.3.b	Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$.	175
4.4	Processus de décohérence	177
5	Polarisation de l'émission d'une boîte quantique	187
5.1	Émission d'une boîte quantique anisotrope	188
5.1.1	États propres d'une boîte à symétrie de révolution	188
5.1.2	Brisure de symétrie, interaction d'échange électron-trou	190
5.2	Mélange trous lourds - trous légers	191
5.2.1	Origine physique	191
5.2.2	Effets du mélange dans le plan des boîtes (xy)	198
5.2.2.a	Les états propres	198
5.2.2.b	Intensité d'émission	199
5.2.3	Effets du mélange dans le plan perpendiculaire (yz)	209
5.2.3.a	Les états propres	209
5.2.3.b	Intensité d'émission	212
5.3	Résultats expérimentaux	215
5.3.1	Principe des mesures en polarisation	215
5.3.2	Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation non résonante	216
5.3.2.a	Protocole expérimental	217
5.3.2.b	Constatations expérimentales	219

5.3.2.c	Statistiques et interprétations	222
5.3.3	Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation résonante	227
5.3.4	Polarisation de la luminescence suivant l'axe de croissance sous excitation non résonante	230
6	Sources de photons uniques	237
6.1	Les différents types de rayonnement électromagnétique	238
6.1.1	Lumière cohérente	238
6.1.2	Distribution statistiques des différents rayonnements	239
6.1.3	Caractérisation de la statistique d'un rayonnement	240
6.2	Caractérisation d'une source de photons uniques	241
6.2.1	Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$	241
6.2.2	Montage Hanbury Brown et Twiss	244
6.2.3	Dégroupement de photons	245
6.3	Les sources de photons uniques	247
6.4	Résultats expérimentaux	250
6.5	Caractérisation d'une source de photons indiscernables	253
6.5.1	Coalescence	253
6.5.2	Réalisations expérimentales	256
	Conclusion	261
	Annexes	263
	A Modèle de Kane	265
	B Calcul des états propres d'une boîte quantique rectangulaire	271
	C Origine de l'interaction coulombienne d'échange	275
	D Résolution des équations de Bloch optiques sous excitation résonnante	283
	E Couplage excitons - phonons acoustiques	289

Introduction

En 1981, Richard Feynman [1] propose d'utiliser les propriétés quantiques de la matière pour réaliser des calculateurs beaucoup plus puissants que les calculateurs classiques. Son idée était de remplacer les bits classiques par des superpositions cohérentes des états propres d'un système à deux niveaux, désignées par le terme de "qubit", ou bits quantiques. Tout système quantique pour lequel il est possible d'isoler et de manipuler deux niveaux discrets d'énergie peut ainsi être utilisé pour réaliser un qubit. C'est par exemple le cas des ions piégés [2], des jonctions Josephson [3, 4], de deux polarisations orthogonales des photons [5], ou de boîtes quantiques semi-conductrices [6].

S'appuyant sur l'idée de Feynman, Peter Shor [7] développe en 1995 le premier algorithme de calcul quantique, permettant la factorisation de grands nombres, tâche impossible à un ordinateur classique. L'implémentation de cet algorithme a été réalisée pour la première fois en 2001 par IBM [8], au moyen d'un ordinateur de 7 qubits, permettant de factoriser le nombre 15. Une telle réalisation nécessite d'intriquer entre eux ces différents qubits [9], et c'est cette capacité d'intrication qui augmente la rapidité de calcul par rapport aux ordinateurs classiques.

Les objets dont nous mènerons l'étude tout au long de ce manuscrit sont des boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs, réalisées par épitaxie par jets moléculaires au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures de Marcoussis. Dans de telles structures, les dimensions nanométriques permettent à basse température de confiner les porteurs de charge, engendrant ainsi une quantification de leur énergie. Elles sont de fait souvent qualifiées d' "atomes artificiels". L'avantage de tels systèmes est qu'étant déjà contenus dans une matrice cristalline, il est possible de les intégrer dans des dispositifs électroniques à semi-conducteurs, ou dans des cavités électromagnétiques pour contrôler leur taux d'émission spontanée. Cela permet d'envisager des applications aussi bien dans le cadre du traitement quantique de l'information [10, 11] que dans celui de la cryptographie quantique [12, 13], nécessitant des sources de photons uniques ou intriqués. Les boîtes quantiques peuvent également être utilisées dans le domaine de l'opto-électronique, pour réaliser par exemple des lasers à faible tension de seuil [14].

Grâce aux derniers progrès réalisés dans les techniques de croissance de ces objets, il devient de plus en plus possible d'en maîtriser la taille, la forme, la composition ou la localisation. Même si la quête d'un contrôle total de ces paramètres est loin d'être achevée, les importantes améliorations de ces dernières années ont entre autre permis de réaliser le couplage fort d'une boîte quantique à une cavité photonique [15], ou de deux boîtes quantiques entre elles pour former une molécule [16], des sources à la demande de photons uniques [12] ou intriqués en polarisation [17].

Le but de cette thèse a ainsi été de mettre en évidence la possibilité d'utiliser des boîtes quantiques semi-conductrices comme support à la réalisation de qubits. Il nous a ainsi fallu démontrer qu'il était possible de définir un système à deux niveaux, dont l'initialisation pouvait être réalisée au moyen d'impulsions lumineuses. Nous avons également mis en évidence notre capacité à manipuler, au moyen d'une seconde impulsion, l'état de ce système et avons dès lors cherché à connaître le temps durant lequel nous étions en mesure de conserver la cohérence de celui-ci. Pour aller plus loin, vers l'intrication de qubits, il nous faut par ailleurs démontrer que les boîtes quantiques sont bien des sources de photons uniques et indiscernables.

Ce mémoire se divise en six chapitres, le premier d'entre eux étant consacré à la présentation du confinement des porteurs de charge dans les semi-conducteurs, en particulier dans les boîtes quantiques où il engendre une quantification de leur énergie. Celles-ci présentant alors un spectre discret, il est possible de définir un système à deux niveaux dont l'état peut être initialisé et manipulé au moyen d'impulsions lumineuses, faisant de ces systèmes d'intéressants candidats pour la réalisation de qubits. Au cours de ce chapitre introductif, seront en outre présentés la croissance des boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs étudiées tout au long de cette thèse et le concept d'exciton, excitation élémentaire d'un semi-conducteur. Plus particulièrement sera abordé l'influence de la forme du potentiel de confinement au sein des boîtes quantiques sur les états propres excitoniques, qui présentent alors une structure fine, modifiant les propriétés spectroscopiques des boîtes.

Le second chapitre sera lui consacré à la description du montage expérimental. Celui-ci a été développé dès 2004, au cours de la thèse de Romain Melet [18], et constamment amélioré depuis, au cours de la thèse d'Alexandre Enderlin [19] et de celle présentée ici. L'originalité de ce dispositif réside dans le découplage spatial entre la direction d'excitation et celle selon laquelle est collectée la luminescence émise par les boîtes quantiques. Une telle disposition permet l'étude sous excitation résonnante de l'état électronique d'une boîte quantique, condition nécessaire à l'initialisation et à la manipulation de qubits au cours d'expériences de contrôle cohérent.

L'interaction résonnante entre des impulsions lumineuses et un système à deux niveaux

sera détaillée dans le troisième chapitre de ce mémoire. Il y sera entre autre expliqué comment l'état du système, passant de l'état fondamental à l'état excité en fonction de l'aire de l'impulsion en effectuant des oscillations de Rabi, peut ainsi être initialisé dans une superposition cohérente, choisie par l'expérimentateur. Une forte limitation réside cependant dans l'amortissement rapide de ces oscillations, dont la cause principale a été mise en évidence expérimentalement comme étant l'interaction du système avec les phonons. Nous avons cependant relevé dans le cas de certaines boîtes la présence d'un amortissement supplémentaire, lié à une fuite de population, tandis que dans d'autres cas, une augmentation de l'intensité d'émission, pouvant s'expliquer par la prise en compte d'un troisième niveau, a été observée.

Le quatrième chapitre présentera dans un premier temps la détermination, par des mesures directes, des temps caractérisant le système à deux niveaux, à savoir son temps de vie radiatif T_1 et son temps de cohérence T_2 . Le premier est ainsi obtenu en mesurant la décroissance temporelle de la luminescence émise par chaque boîte, tandis que le second l'est en mesurant la largeur spectrale des raies d'émission correspondantes. Dans un second temps sera également présenté le contrôle cohérent, qui constitue la technique expérimentale développée afin de manipuler l'état électronique d'une boîte quantique au moyen d'impulsions lumineuses dont la phase est précisément contrôlée au moyen d'un interféromètre de Michelson stabilisé en phase. De telles expériences nous ont alors permis de déterminer, d'une autre manière, indépendante des mesures directes, les temps caractéristiques T_1 et T_2 .

De surprenants résultats obtenus lors de l'étude de la structure fine excitonique nous ont conduits à nous intéresser aux propriétés de polarisation de la luminescence des boîtes quantiques. Cette étude, présentée dans le cinquième chapitre, a mis en évidence un fort mélange des états de la bande de valence, résultant en une modification de l'émission des deux états propres excitoniques. Cette étude en polarisation, qui sous excitation non résonnante nous a permis de déterminer la proportion de trous légers dans le mélange, a également rendu possible, sous excitation résonnante, l'obtention du rapport des forces d'oscillateur des deux états.

Finalement un dernier chapitre nous permettra d'introduire la caractérisation des boîtes quantiques comme sources, à la demande, de photons uniques et indiscernable et nous y présenterons les résultats préliminaires obtenus dans cette voie. En effet, l'ajout à notre montage expérimental d'un dispositif du type Hanbury Brown et Twiss nous a permis de confirmer qu'un unique photon était émis à chaque interaction du système avec une impulsion et l'indiscernabilité de ces photons sera démontrée dans le futur par la mise en place d'un dispositif de type Hong, Ou et Mandel.

Chapitre 1

Boîtes quantiques semi-conductrices

Sommaire

1.1	Hétéro-structures semi-conductrices	12
1.2	Croissance de boîtes quantiques	15
1.3	Propriétés électroniques des semi-conducteurs	18
1.3.1	Structure de bande dans le matériau massif, méthode <i>k.p</i>	18
1.3.1.a	Fonctions propres : les fonctions de Bloch	18
1.3.1.b	Énergies propres et masses effectives	19
1.3.2	Fonction enveloppe, états propres d'un puits quantique	25
1.3.3	États propres d'une boîte quantique	26
1.4	Propriétés optiques des semi-conducteurs	28
1.4.1	Transitions optiques	28
1.4.2	Absorption	31
1.4.3	Photoluminescence	33
1.5	Excitons dans les semi-conducteurs	37
1.5.1	Le concept d'exciton	37
1.5.2	Correspondance électron de valence - trou	38
1.5.3	Énergie de l'exciton	40
1.5.3.a	États propres excitoniques sans interaction d'échange	42
1.5.3.b	Conséquences de l'interaction d'échange dans un système isotrope	43
1.5.4	Boîte anisotrope, structure fine de l'exciton	47
1.5.5	Mise en évidence expérimentale	52

Dans ce chapitre introductif, nous présenterons les hétéro-structures semi-conductrices, dans lesquelles le confinement des porteurs de charge modifie les propriétés électroniques et optiques, et nous nous attarderons plus particulièrement sur la formation des hétéro-structures étudiées au cours de cette thèse, à savoir des boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs. Nous déterminerons ensuite la structure de bande des semi-conducteurs massifs, avant de considérer l'effet du confinement dans le cas d'un puits quantique et pour finir sur le cas d'une boîte quantique. Nous déduisons alors, à partir de la structure électronique ainsi déterminée, les propriétés optiques d'absorption et d'émission et pour finir, nous introduisons le concept d'exciton, qui sera utilisé tout au long de ce mémoire.

1.1 Hétéro-structures semi-conductrices

Dans les milieux denses (métaux, isolants, semi-conducteurs ...), les niveaux d'énergie électroniques sont organisés sous forme de bandes qui sont des continuums d'énergie accessibles, séparées par des bandes d'énergie interdites. Dans les semi-conducteurs massifs à température nulle, la dernière bande occupée (bande de valence) est pleine, tandis que la bande supérieure (bande de conduction) est vide. C'est bien sûr également le cas des isolants, à la différence que dans un semi-conducteur, la bande d'énergie interdite, désignée par le terme anglo-saxon "gap", entre la bande de valence et la bande de conduction est assez étroite pour que lors d'un apport énergétique, par exemple sous forme thermique, des électrons passent de la bande de valence à la bande de conduction, laissant ainsi un trou dans la bande de valence. Ainsi, ces matériaux qui sont isolants à température nulle peuvent devenir conducteurs à température ambiante [20, 21, 22, 23].

À l'échelle macroscopique, les propriétés électroniques et optiques de tels matériaux ne dépendent pas en général, de la taille de l'objet considéré. En effet, un diamant par exemple conserve la même couleur quelles que soient ses dimensions. Il existe cependant une taille critique en deçà de laquelle les propriétés d'un matériau semi-conducteur varient avec ses dimensions et il est par exemple possible de changer la couleur de certains nanocristaux, en changeant uniquement leur taille. Ce changement de couleur s'explique par une modification des états électroniques aux sein des nano-structures, en raison de la présence d'un confinement des porteurs de charges dans celles-ci.

En effet, le principe d'incertitude d'Heisenberg établit que si une particule est confinée dans une direction x , sur une distance Δx , l'incertitude sur sa quantité de mouvement dans cette direction s'écrit alors $\Delta p_x \approx \hbar/2\Delta x$. Si la particule considérée est un électron

de masse m_e , libre dans les deux autres directions de l'espace, le confinement selon x ajoute à son énergie cinétique dans le plan (xy) :

$$E_{libre} = \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_e^*} \quad (1.1)$$

où m_e^* est la masse effective de l'électron et k_{\parallel} son vecteur d'onde dans le plan (xy) , un terme de confinement du type :

$$E_{conf} = \frac{(\Delta p_x)^2}{2m_e^*} \approx \frac{\hbar^2}{2m_e^*(2\Delta x)^2} \quad (1.2)$$

Pour que ce confinement ait un effet significatif, il faut que l'énergie E_{conf} correspondante soit supérieure à l'énergie d'agitation thermique $k_B T/2$ de l'électron dans la direction x , c'est à dire :

$$E_{conf} \approx \frac{\hbar^2}{2m_e^*(2\Delta x)^2} > \frac{1}{2}k_B T \quad (1.3)$$

soit :

$$\Delta x < \frac{\hbar}{2\sqrt{m_e^* k_B T}} \quad (1.4)$$

En d'autres termes, pour que le confinement dans la direction x ait un effet sur les propriétés électroniques d'un matériau, il faut que la dimension Δx dans cette direction soit inférieure à la longueur d'onde thermique de de Broglie $\lambda_{th} = \sqrt{2\pi\hbar/m_e^* k_B T}$. Nous pouvons donc estimer que dans un semi-conducteur à température ambiante, pour un électron de conduction de masse effective $m_e^* \approx 0.1m_e$, il faut que les dimensions d'une structure dans la direction x soit d'environ 5 nm pour que celle-ci soit capable de confiner les électrons dans cette direction.

En fonction du nombre de degrés de liberté des électrons dans une hétéro-structure semi-conductrice, il est possible de distinguer différents types de structures, ayant chacune des propriétés bien définies. Sur la figure (1.1) est représentée la densité d'états électroniques en fonction de la dimensionnalité des ces structures. Considérons tout d'abord le matériau massif, dans lequel les porteurs de charge ne sont pas confinés dans l'espace et possèdent ainsi trois degrés de liberté et une densité d'état continue, proportionnelle à \sqrt{E} . Dans un puits quantique, les électrons sont confinés dans une direction, il n'ont plus alors que deux degrés de liberté et leur densité d'états est indépendante de l'énergie. De même, dans un fil quantique, les électrons sont confinés selon deux directions et n'ont de fait plus qu'un degré de liberté et leur densité d'état est proportionnelle à $1/\sqrt{E}$. Pour finir, intéressons-nous au cas des boîtes quantiques, dans lesquelles les électrons sont confinés dans les trois directions de l'espace, et qui sont donc considérées comme des structures $0D$ car les porteurs de charge n'ont plus le moindre degré de liberté. Ces structures ont une densité d'états discrète, consistant en une série de pics de Dirac. En raison de cette discrétisation des états

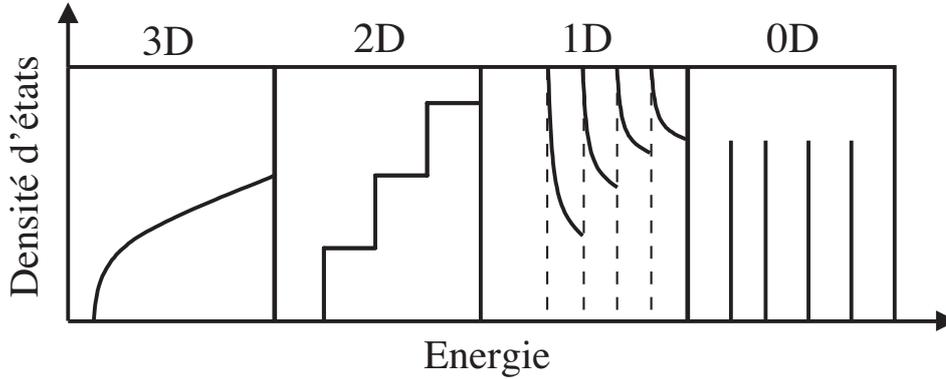


FIGURE 1.1 : Représentation générale de la densité d'état des électrons de conduction en fonction de leur nombre de degrés de liberté.

électroniques les boîtes quantiques sont parfois qualifiées de "macro-atomes" ou "atomes artificiels". Elles présentent en effet une partie des propriétés électroniques rencontrées en physique atomique, comme la possibilité de définir un système à deux niveaux pouvant être initialisé dans une superposition cohérente de ses états propres et dont l'état peut par la suite être manipulé. C'est pour cette raison que les boîtes quantiques, outre l'avantage de pouvoir s'intégrer dans des dispositifs électroniques à semi-conducteur, sont considérées comme de potentielles candidates pour la réalisation de bits quantiques ou "qu-bits". C'est à l'étude de ce type de structure, par des expériences de micro-photoluminescence à basse température, au moyen d'impulsions lumineuses, que nous allons consacrer ce mémoire.

Le confinement des porteurs de charge a donc pour conséquence principale, une modification de l'énergie des électrons et de leur densité d'états. Dans les semi-conducteurs, ce confinement est obtenu en réalisant des hétéro-structures, élaborées en épitaxiant successivement sur un substrat des matériaux de "gap" différents [24, 25]. Sur la figure (1.2) est ainsi schématisée la réalisation d'un puits quantique obtenu par le dépôt sur un substrat d'arséniure de gallium (GaAs) d'une couche d'arséniure de gallium-aluminium (GaAlAs), suivie de GaAs et pour finir d'une dernière couche de GaAlAs. L'épaisseur d de la couche centrale de GaAs est choisie de façon à ce que le mouvement des électrons soit confiné dans la direction de croissance z (leur mouvement restant libre dans le plan (xy)). Sur la figure (1.2.b) est représentée la variation spatiale du potentiel de la bande de valence (V_v) et de la bande de conduction (V_c), en prenant en compte la différence entre le gap du matériau barrière, ici le $\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x\text{As}$ ($E_g = 1.9 - 1.6 \text{ eV}$ en fonction de la quantité x d'aluminium dans l'alliage), et celui du matériau puits, ici le GaAs ($E_g = 1.43 \text{ eV}$ à température ambiante). Comme $E_g(\text{GaAs}) < E_g(\text{GaAlAs})$, les porteurs se trouvent ainsi piégés dans le puits.

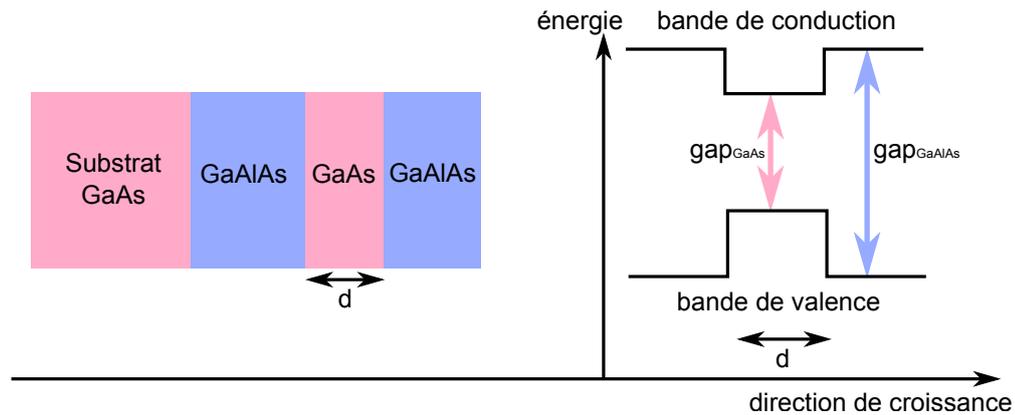


FIGURE 1.2 : Réalisation d'une hétéro-structure : le puits quantique de GaAs dans des barrières de GaAlAs.

1.2 Croissance de boîtes quantiques

Les boîtes quantiques sont donc des hétéro-structures semi-conductrices dans lesquelles le confinement des porteurs de charge dans les trois directions de l'espace engendre une quantification de leurs niveaux d'énergie. Il a été découvert en 1985 [26] que ce type de structure se formait spontanément durant les processus d'épitaxie en régime Stranski-Krastanov, ce qui a stimulé dès le début des années 1990 une importante recherche dans ce domaine [27, 28, 29, 30]. Différents type de boîtes ont depuis été réalisées, par épitaxie par jet moléculaire (MBE) [31, 32] ou par dépôt chimique en phase vapeur (MOCVD) [33, 32], ces deux techniques permettant de contrôler l'épaisseur des différentes couches épitaxiées avec une précision atomique. Le fait que ces boîtes puissent être formées directement durant l'épitaxie permet de les incorporer aisément dans des dispositifs tels que des diodes laser, dont le courant seuil et la sensibilité à la température sont alors diminués [34]. Notons cependant que la taille et la position des boîtes quantiques dont la croissance est ainsi réalisée ne peuvent à ce jour pas être précisément contrôlées, ce qui en limite les applications.

Les boîtes que nous avons étudiées sont des boîtes d'InAs/GaAs auto-organisées selon le mode de croissance Stranski-Krastanov, réalisées par épitaxie par jet moléculaire au Laboratoire Photonique et Nanostructures (LPN) de Marcoussis, en déposant à partir de vapeurs d'atomes, mono-couche par mono-couche de l'InAs sur un substrat cristallin de GaAs. Dans le mode Stranski-Krastanov [35], le dépôt d'InAs commence par former une couche atomique complète à la surface du substrat de GaAs, mais en raison de la différence de paramètres de maille Δa entre le réseau cristallin du substrat et la couche d'InAs ($\Delta a_{InAs} = 1.07 \Delta a_{GaAs}$), celle-ci doit adapter sa structure à celle du GaAs, provoquant ainsi une compression dans le plan de la couche. À partir d'une épaisseur critique d'environ 1.7 mono-couches d'InAs, les contraintes accumulées deviennent trop fortes pour que

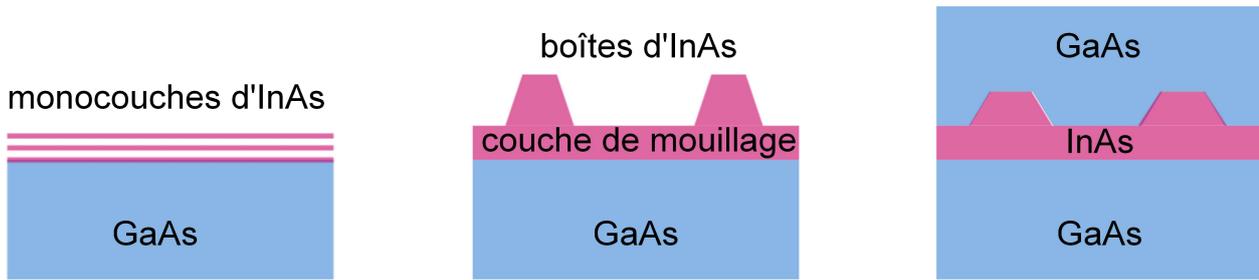


FIGURE 1.3 : Schématisation de la croissance dans le mode Stranski-Krastanov de boîtes d'InAs/GaAs.

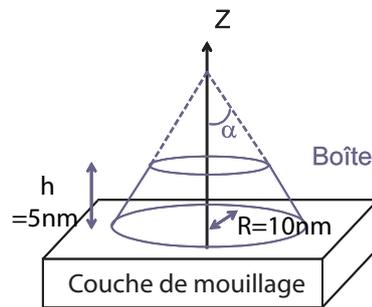
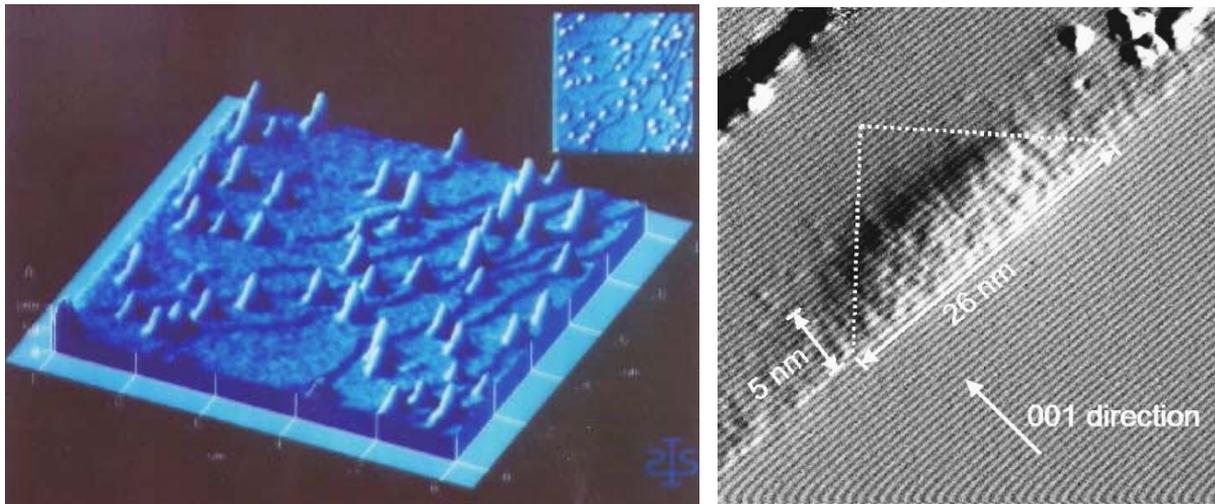


FIGURE 1.4 : Schéma typique d'une boîte quantique auto-organisée.

la croissance puisse se poursuivre à deux dimensions et il se produit une nucléation d'îlots d'InAs, répartis aléatoirement sur la première mono-couche d'InAs [36]. Cette dernière qui forme un puits quantique car elle confine les porteurs de charge uniquement dans la direction de croissance (z) est appelée couche de mouillage ("wetting layer" en anglais). Comme le schématise la figure (1.3), la croissance est ensuite achevée par un nouveau dépôt de GaAs, donnant à ces îlots la forme de cônes tronqués [37], représentés sur la figure (1.4), d'une hauteur d'environ 5 nm pour un rayon d'environ 10 nm , dont les dimensions peuvent être contrôlées en modifiant leur paramètres de croissance (pression et température) [38]. Ces dimensions nanométriques et la différence de gap entre l'InAs et le GaAs permettent le confinement des porteurs de charge dans les trois directions de l'espace, faisant donc de ces îlots des boîtes quantiques d'un potentiel de confinement d'environ 500 meV .

La figure (1.5.a) montre une image AFM de ces îlots, avant le dépôt final de GaAs qui aura pour effet de les aplatir et de leur donner leur forme finale, illustrée dans la figure (1.5.b). Nous voyons ainsi un ensemble de boîtes, formées aléatoirement pour relaxer les contraintes accumulées lors de la croissance de l'InAs. Notons que chacune d'entre elles est formé à partir des atomes de la couche de mouillage l'entourant, celle-ci ainsi modifiée pouvant alors présenter des puits de potentiels peu profonds, mais néanmoins capables de piéger les porteurs à basse température et de perturber l'état électronique de la boîte



(a) ensemble de boîtes

(b) coupe transverse d'une boîte unique

FIGURE 1.5 : (a) Images AFM réalisée par J.M. Moison [41] d'un ensemble de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs avant dépôt de la dernière couche de GaAs et (b) image STM d'une boîte quantique unique d'InAs après dépôt de la dernière couche de GaAs issue de [40].

quantiques voisine [39]. La figure (1.5.b), tirée de [40], montre quant à elle l'image STM d'une coupe transverse d'une boîte quantique d'InAs, dans sa forme finale (après dépôt de la dernière couche de GaAs). Elle se trouve ainsi aplatie, et sa dimension dans la direction de croissance [001] est de l'ordre de 5 nm.

Comme nous le verrons par la suite, nous nous intéressons aux propriétés électroniques d'objets uniques. Afin d'obtenir une densité de boîtes suffisamment faible, permettant de résoudre spatialement et spectralement l'émission de boîtes individuelles, les échantillons que nous avons étudiés possèdent un gradient d'épaisseur d'InAs déposé. Trois zones de croissance peuvent alors être distinguées, une zone dite "2D", ne comportant qu'une mince couche d'InAs qui n'a pas encore transité vers la formation d'îlots, une zone dite "3D" dans laquelle suffisamment d'InAs a été déposée pour permettre la croissance de boîtes quantiques, et entre ces deux régions, une zone dite "frontière", dont l'épaisseur est voisine de l'épaisseur critique et pour laquelle la couche d'InAs est au seuil de la transition 2D–3D. Ainsi, alors que la zone 2D ne comporte aucune boîte quantique, la zone 3D présente elle une densité de boîtes trop importante (de l'ordre de 10^{12} cm^{-2}), ne permettant pas d'isoler facilement l'émission individuelle de chaque boîte. Il nous faut donc travailler en zone frontière, où la densité de boîtes quantiques est non nulle tout en restant assez faible (entre 10^7 cm^{-2} et 10^{10} cm^{-2}), pour qu'il soit possible d'isoler spectralement les raies homogènes de luminescence de chaque boîte.

1.3 Propriétés électroniques des semi-conducteurs

Avant de considérer le cas particulier des boîtes quantiques, commençons par étudier la structure de bande d'un semi-conducteur massif, avant de considérer l'effet du confinement.

1.3.1 Structure de bande dans le matériau massif, méthode $k.p$

Pour accéder à la structure de bande d'un matériau, plusieurs méthodes sont couramment utilisées, en particulier la méthode des liaisons fortes [21, 42], dans laquelle les électrons sont considérés fortement liés aux atomes du réseau cristallin et la méthode $k.p$ [23, 43, 44, 45] où le réseau cristallin est représenté par un potentiel périodique perturbatif. Cette seconde méthode que nous allons présenter par la suite est la plus adaptée au système que nous considérons, car dans les semi-conducteurs les électrons sont faiblement liés aux atomes du réseau cristallin et sont de ce fait considérés comme presque libres [20].

1.3.1.a Fonctions propres : les fonctions de Bloch

La matrice cristalline du semi-conducteur dans laquelle se trouvent les électrons peut être représentée par un potentiel périodique $\mathcal{U}(\mathbf{r})$, tel que :

$$\mathcal{U}(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = \mathcal{U}(\mathbf{r}) \quad (1.5)$$

où le vecteur \mathbf{a} définit la période du réseau. Le hamiltonien d'un électron soumis à un tel potentiel prend alors la forme :

$$\hat{H} = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \quad (1.6)$$

avec m_e la masse de l'électron libre et $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ l'opérateur quantité de mouvement de l'électron.

En l'absence de potentiel extérieur ($\mathcal{U}(\mathbf{r}) = 0$), la fonction d'onde de l'électron libre a la forme d'une fonction d'onde plane du type $e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$. Dans le réseau, il faut tenir compte du potentiel périodique $\mathcal{U}(\mathbf{r})$ et la fonction d'onde la plus simple, solution de l'équation aux valeurs propres (1.6) est alors la fonction de Bloch, de la forme :

$$\psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{V}}} e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.7)$$

Le préfacteur $1/\sqrt{\mathcal{V}}$, où \mathcal{V} est le volume du cristal, étant juste un terme de normalisation, nous distinguons deux contributions importantes, la partie onde plane $e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}$ et la partie atomique $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ qui possède la périodicité du réseau :

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.8)$$

Physiquement, la fonction de Bloch (1.7) peut donc s'interpréter comme la fonction d'onde d'un électron libre, modulée par le potentiel périodique du réseau, variant beaucoup plus rapidement à l'échelle de la maille.

La fonction d'onde d'onde (1.7) vérifie le théorème de Bloch :

$$\psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r} + \mathbf{a}) = e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{a}} \psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) \quad (1.9)$$

et la condition de normalisation :

$$\langle \psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) | \psi_{n'\mathbf{k}'}^B(\mathbf{r}) \rangle = \int_{\mathcal{V}} d^3r \psi_{n\mathbf{k}}^{B*}(\mathbf{r}) \psi_{n'\mathbf{k}'}^B(\mathbf{r}) = \delta_{nn'} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (1.10)$$

L'équation aux valeurs propres d'un électron dans le cristal périodique s'écrit donc :

$$\left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] \psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) = E_{n\mathbf{k}} \psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r}) \quad (1.11)$$

où $E_{n\mathbf{k}}$ est l'énergie propre associée à la fonction d'onde $\psi_{n\mathbf{k}}^B(\mathbf{r})$, "n" représentant l'indice de la bande.

Notons que pour $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{0}$, les fonctions $u_{n\mathbf{0}}$ sont fonctions propres du hamiltonien (1.6) et forment donc une base sur laquelle nous pouvons développer toute fonction d'onde :

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_m C_{m\mathbf{k}} u_{m\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \quad (1.12)$$

Nous ne considérerons par la suite que quatre bandes (huit en prenant en compte le spin de l'électron), la bande de conduction de symétrie Γ_6 (pour plus de détails, se référer à la théorie des groupes [46]), deux fois dégénérée en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, pour laquelle les parties périodiques $u_{10}(\mathbf{r})$ et $u_{20}(\mathbf{r})$ ont une symétrie de type s (symétrie sphérique, paire en x , y , et z), et les bandes de valence Γ_8 , quatre fois dégénérée en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ et Γ_7 , deux fois dégénérée en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, dont les parties périodiques $u_{30}(\mathbf{r})$ et $u_{40}(\mathbf{r})$, ont une symétrie de type p_x (impaire en x , paire en y , et z), $u_{50}(\mathbf{r})$ et $u_{60}(\mathbf{r})$ une symétrie de type p_y (impaire en y , paire en x , et z), et $u_{70}(\mathbf{r})$ et $u_{80}(\mathbf{r})$ une symétrie de type p_z (impaire en z , paire en x , et y).

1.3.1.b Énergies propres et masses effectives

Les énergies propres $E_{n\mathbf{k}}$ associées aux fonctions de Bloch (1.7) sont solutions de l'équation (1.11) qui en développant devient :

$$\left[\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = E_{n\mathbf{k}} e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.13)$$

avec :

$$\begin{aligned}
\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) &= \frac{(-i\hbar\nabla)^2}{2 m_e} (e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})) + \mathcal{U}(\mathbf{r}) (e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})) \\
&= \frac{e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}}{2 m_e} [\hbar^2 \mathbf{k}^2 u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) + 2\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) + \mathbf{p}^2 u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})] + \mathcal{U}(\mathbf{r}) e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \\
&= e^{i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \left[\frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \frac{\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}{m_e} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})
\end{aligned} \tag{1.14}$$

où pour alléger l'écriture, nous avons remplacé $\hat{\mathbf{p}}$ par \mathbf{p} . Nous avons donc l'équation de Schrödinger effective, pour les fonctions périodiques $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$:

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \frac{\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}{m_e} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = E_{n\mathbf{k}} u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \tag{1.15}$$

où le hamiltonien effectif :

$$\hat{H}^{eff} = \frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) + \frac{\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}{m_e} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \tag{1.16}$$

peut se mettre sous la forme :

$$\hat{H}^{eff} = \hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) + \hat{W}(\mathbf{k}) \tag{1.17}$$

avec

$$\begin{cases} \hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) = \frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \\ \hat{W}(\mathbf{k}) = \frac{\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p}}{m_e} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \end{cases} \tag{1.18}$$

$\hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0})$ est le hamiltonien cristallin, associé à l'équation de Schrödinger :

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) \right] u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r}) = E_{n\mathbf{0}} u_{n\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \tag{1.19}$$

Le terme $\hat{W}(\mathbf{k})$ est quant à lui traité comme une perturbation du deuxième ordre, le premier terme : $\hbar \mathbf{k} \cdot \mathbf{p}/m_e$ étant responsable du couplage entre les différentes bandes, dont il modifie la courbure, tandis que le second : $\hbar^2 \mathbf{k}^2/2 m_e$ correspond à l'énergie cinétique d'un électron libre et aura uniquement pour effet de décaler l'énergie des bandes.

Cette méthode dite " $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$ " est utilisée depuis les années 50 [47] pour déterminer de manière analytique la structure de bande des semi-conducteurs massifs. C'est ainsi qu'en 1954 furent déterminés les états de la bande de valence [48], qui furent retrouvés deux ans plus tard en utilisant la théorie des groupes [49]. Dans cet article sont introduits les paramètres dits "de Luttinger", qui permettent d'améliorer la description des états électroniques en tenant compte des couplages entre bandes lointaines par interaction $\mathbf{k} \cdot \mathbf{p}$. Dans l'Annexe

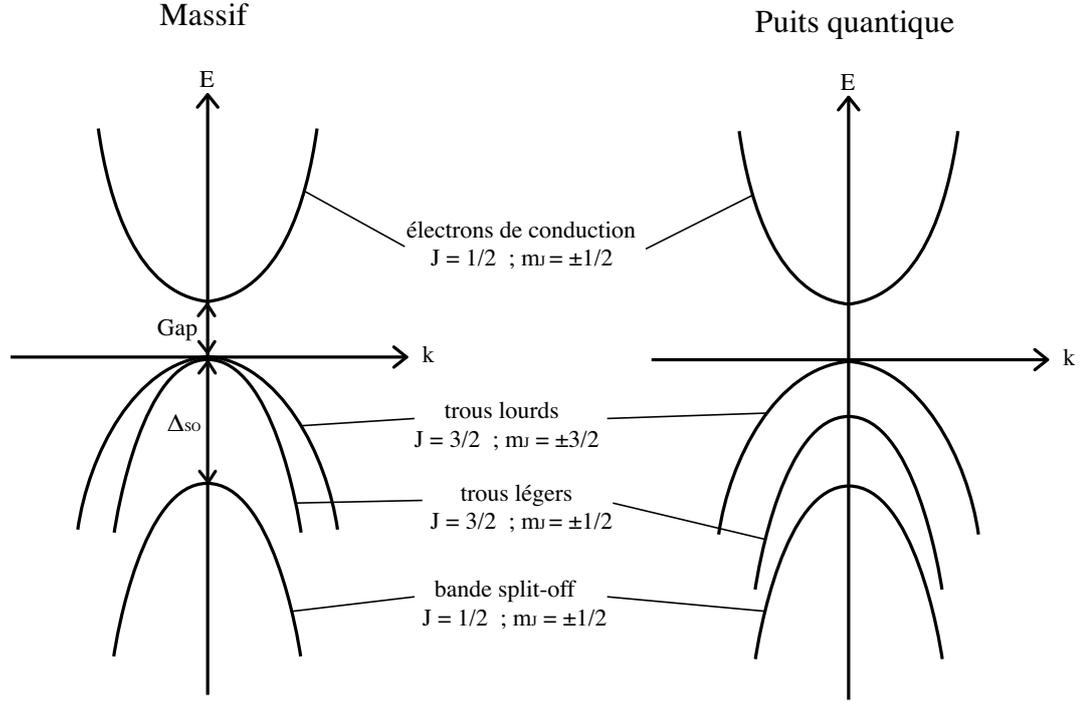


FIGURE 1.6 : Structure de bande des électrons et des trous dans le semi-conducteur massif au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ et dans le cas d'un puits quantique.

A est effectué le calcul des énergies propres dans le matériaux massif, via la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$, en utilisant le modèle de Kane [50], décrivant le couplage entre la bande de conduction Γ_6 et les bandes de valence Γ_7 et Γ_8 .

La dérivation changeant la parité d'une fonction, les termes perturbatifs au premier ordre sont tous nuls :

$$\frac{\hbar^2}{m_e^2} \langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k}\cdot\mathbf{p} | u_{m,\mathbf{0}} \rangle = 0 \quad (1.20)$$

Il faut donc utiliser une approche perturbative au second ordre qui nous permet d'obtenir les énergies propres :

$$E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2}{m_e^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k}\cdot\mathbf{p} | u_{m,\mathbf{0}} \rangle|^2}{E_{n,\mathbf{0}} - E_{m,\mathbf{0}}} \quad (1.21)$$

Réécrivons l'équation (1.21) sous la forme :

$$E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m^*}, \quad (1.22)$$

afin de définir la masse effective m^* , des particules constituant la bande n . C'est cette masse effective, qui indique la courbure de bande. Ainsi, comme indiqué dans le tableau (1.1), nous voyons que cette masse est positive pour les électrons de la bande de conduction

qui est courbée vers le haut et négative pour les trous des bandes de valence, courbées vers le bas, comme cela est illustré par la figure (1.6). La notion de trou sera introduite plus tard dans ce chapitre, notons simplement que lorsqu'un électron passe de la bande de valence à la bande de conduction, il laisse un "trou" dans la bande de valence et plutôt que de considérer l'ensemble des électrons restant dans cette bande, il est usuel de considérer le trou, dont la charge et l'énergie sont opposées à celle de l'électron de valence. Notons finalement que c'est en raison de ces différentes masses effectives que sont utilisés les adjectifs "lourd" et "léger" pour les deux bandes Γ_8 .

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

TABLE 1.1 : *Masses effectives des particules dans le GaAs.*

La figure (1.6) schématise les quatre bandes que nous considérons, obtenues au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ par la méthode $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ que nous venons de détailler. Nous les avons représentées dans le cas d'un semi-conducteur massif et dans celui d'un puits quantique, où en raison du confinement, la dégénérescence des bandes Γ_8 (trous lourds et légers) a été levée. Notons que pour les transitions optiques mettant uniquement en jeu des vecteurs d'onde de norme voisine de zéro, la description des bandes seulement au centre de zone est suffisante. Il est cependant possible si besoin est, par diverses méthodes comme celle du pseudo-potential [51, 52], d'affiner cette description et de l'étendre à toute la zone de Brillouin. Ainsi, la figure (1.7) montre le calcul de la structure de bande de l'arséniure de gallium (GaAs), réalisé au moyen du logiciel FHI98md [53]. En rouge est entouré l'ensemble des quatre bandes considérées, Γ_6 , Γ_7 et les deux bandes Γ_8 , au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$.

Les électrons de conduction provenant d'une bande à symétrie s, leur moment cinétique orbital est $L = 0$, tandis que ceux de valence provenant de bandes à symétrie p, ont pour moment cinétique orbital $L = 1$. En prenant de plus en compte leur spin $S = 1/2$, les électrons de la bande de conduction possèdent un moment cinétique total $J = L + S = 1/2$ avec les deux projections $m_J = \pm 1/2$ autorisées, et ceux des trois bandes de valence possèdent eux un moment cinétique total $J = 3/2$ pour les bandes Γ_8 , avec les quatre projections $m_J = \pm 1/2; \pm 3/2$ autorisées, ou un moment cinétique total $J = 1/2$ pour la bande Γ_7 , avec les deux projections $m_J = \pm 1/2$ autorisées.

Les deux bandes Γ_8 , toutes deux de moment cinétique total $J = 3/2$ et dégénérées deux fois chacune lorsque l'on tient compte du spin, sont décalées de la bande de conduction

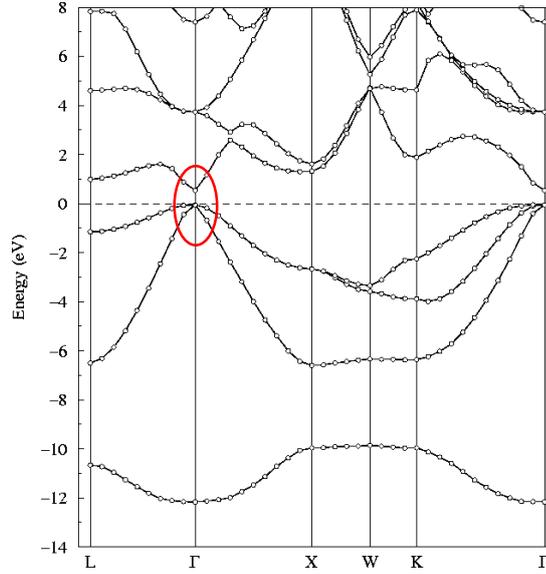


FIGURE 1.7 : Structure de bande des électrons et des trous dans le GaAs massif par la méthode des pseudo-potentiels [53].

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

TABLE 1.2 : Tableau récapitulatif des constantes de GaAs et d'InAs à température ambiante.

d'une énergie E_g égale au gap du matériau, dont les valeurs pour les matériaux nous intéressant sont présentées dans le tableau (1.2). Si dans le matériau massif, ces deux bandes ont la même énergie en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$, elles présentent toutefois des courbures différentes, comme le montre la figure (1.6), puisque dans l'approche $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$, la masse effective dépend de la valeur de la projection m_J du moment cinétique. La bande de valence $m_J = \pm 3/2$ présente ainsi une plus faible courbure que la bande $m_J = \pm 1/2$ et la masse effective des trous de la première bande est donc plus grande en valeur absolue que la masse effective des trous de la seconde, c'est pourquoi les premiers sont appelés trous lourds et les seconds trous légers.

Dans les semi-conducteurs $III - V$, il est par ailleurs nécessaire de considérer l'interaction spin-orbite [23, 43] représentée par l'opérateur \hat{H}_{so} :

$$\hat{H}_{so} = \frac{\hbar}{4m_0^2c^2} \hat{\mathbf{S}} \cdot (\nabla V \times \hat{\mathbf{p}}), \quad (1.23)$$

qui ne commute pas avec l'opérateur de spin, $\hat{\mathbf{S}}$. La prise en compte de cette interaction a pour conséquence le rejet de la bande Γ_7 , correspondant au moment cinétique total $J = 1/2$ et dénommée bande split-off, en dessous des deux autres bandes de trous à une énergie

– Δ_{so} . Le hamiltonien $\hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0})$ s'écrit alors :

$$\hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) = \frac{\mathbf{p}^2}{2 m_e} + \mathcal{U}(\mathbf{r}) + \hat{H}_{so} \quad (1.24)$$

et il a pour fonctions propres $u_{m\mathbf{0}}$ [54, 55] :

– bande Γ_6 (bande de conduction)

$$\begin{cases} u_{1\mathbf{0}} = \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c = i |S \uparrow\rangle \\ u_{2\mathbf{0}} = \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c = i |S \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.25)$$

– bande Γ_8^{lh} (bande de trous légers)

$$\begin{cases} u_{3\mathbf{0}} = \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v = \frac{1}{\sqrt{6}} |(X + iY) \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \uparrow\rangle \\ u_{4\mathbf{0}} = \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v = -\frac{1}{\sqrt{6}} |(X - iY) \uparrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.26)$$

– bande Γ_8^{hh} (bande de trous lourds)

$$\begin{cases} u_{5\mathbf{0}} = \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v = \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \\ u_{6\mathbf{0}} = \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v = -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.27)$$

– bande Γ_7 (bande split-off)

$$\begin{cases} u_{7\mathbf{0}} = \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v = \frac{1}{\sqrt{3}} |(X + iY) \downarrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} |Z \uparrow\rangle \\ u_{8\mathbf{0}} = \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v = -\frac{1}{\sqrt{3}} |(X - iY) \uparrow\rangle + \frac{1}{\sqrt{3}} |Z \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.28)$$

où nous avons défini $|S\rangle$, $|X\rangle$, $|Y\rangle$ and $|Z\rangle$, des fonction orbitales se transformant comme les fonctions atomiques s , p_x , p_y and p_z , et où $|\uparrow\downarrow\rangle$ représente la composante de spin. En prenant en compte le couplage spin-orbite, les nouvelles fonctions propres de valence sont donc des combinaisons linéaires des fonctions $|X\rangle$, $|Y\rangle$, et $|Z\rangle$.

Les valeurs élevées des splitting Δ_{so} dans les matériaux tels que le GaAs ou l'InAs, rappelées dans le tableau (1.2), nous permettent expérimentalement de sélectionner les transitions optiques faisant intervenir uniquement les deux bandes de trous de plus haute énergie. Dans la suite, nous ne tiendrons donc plus compte de la présence de la bande Γ_7 .

1.3.2 Fonction enveloppe, états propres d'un puits quantique

Dans une hétéro-structure qui confine les porteurs de charge dans une ou plusieurs directions de l'espace, les fonctions de Bloch (1.7) définies précédemment ne sont plus fonctions propres du système. Nous devons alors écrire les fonctions d'onde sous la forme [54] :

$$\psi_{\alpha\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \chi(\mathbf{r}) u_{\alpha\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (1.29)$$

où la "fonction enveloppe" $\chi(\mathbf{r})$, variant lentement par rapport à la période du réseau, est fonction propre du hamiltonien masse effective, et obéit à l'équation :

$$\left[\frac{\mathbf{p}^2}{2m^*} + V_{conf}(\mathbf{r}) \right] \chi(\mathbf{r}) = \mathcal{E} \chi(\mathbf{r}) \quad (1.30)$$

où m^* est la masse effective de l'électron, qui prend en compte l'effet du potentiel cristallin, et $V_{conf}(\mathbf{r})$ le potentiel de confinement. Dans le cas du matériau massif, nous avons ainsi :

$$\chi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{V}}} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \quad (1.31)$$

Si nous considérons le cas d'un puits quantique, confinant les électrons dans la direction z par exemple, nous pouvons séparer le mouvement libre de l'électron dans le plan (xy) de son mouvement limité spatialement selon z . Sa fonction enveloppe peut prendre la forme :

$$\chi(\mathbf{r}) = g(x, y) f(z) \quad (1.32)$$

et il est ainsi possible de résoudre séparément l'équation de Schrödinger pour ces deux fonctions. L'état du système est alors décrit au moyen de deux paramètres, le vecteur d'onde \mathbf{k}_{\parallel} , du mouvement libre de l'électron dans le plan (xy) et un nombre quantique n indiquant le niveau d'énergie dans la direction z . Nous considérerons uniquement le cas d'un électron de conduction, en prenant l'origine des énergies au bas de la bande de conduction, et en négligeant toute interaction avec les électrons de la bande de valence. L'énergie totale est alors obtenue en additionnant l'énergie dans la direction de quantification et l'énergie libre :

$$\mathcal{E}(n_z n, \mathbf{k}_{\parallel}) = E_{n_z} + E(\mathbf{k}_{\parallel}) \quad (1.33)$$

Comme le mouvement de l'électron est libre dans le plan (xy) , sa fonction enveloppe est décrite par une onde plane de la forme :

$$g(x, y) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i(k_x x + k_y y)} \quad (1.34)$$

correspondant, dans l'approximation de la masse effective, à une énergie :

$$E(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2}{2m_e^*} \quad (1.35)$$

En effet, il est aisé de montrer que les fonctions :

$$\chi(\mathbf{r}) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i(k_x x + k_y y)} f(z) \quad (1.36)$$

où L_x et L_y sont les dimensions du puits de potentiel dans les directions x et y , et $f(z)$ est une fonction de z quelconque, sont bien fonctions propres du hamiltonien masse effective et obéit à l'équation (1.30).

Le calcul de la fonction $f(z)$ et de l'énergie E_{n_z} est déterminé par la dépendance spatiale de la bande de conduction (la seule prise en compte ici). Les puits quantiques n'étant pas l'objet de ce mémoire, nous considérerons seulement le cas simple d'un puits infini, de largeur $L_z \ll L_x, L_y$, pour lequel nous avons donc les conditions aux limites :

$$f(z = L_z/2) = f(z = -L_z/2) = 0 \quad (1.37)$$

L'équation de Schrödinger :

$$-\frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{d^2 f_{n_z}(z)}{dz^2} = E(n_z) f_{n_z}(z) \quad (1.38)$$

a donc pour solution :

$$\begin{cases} f_{n_z}(z) = \sqrt{\frac{2}{L_z}} \sin(k_{n_z} z + \frac{n_z \pi}{2}) \\ E(n_z) = \frac{\hbar^2 k_{n_z}^2}{2m_e^*} = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} \frac{\pi^2 n_z^2}{L_z^2} \end{cases} \quad (1.39)$$

En appliquant la même méthode aux électrons de valence, un résultat similaire est trouvé et nous voyons comment dans le puits quantique, la dégénérescence en $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ des deux bandes Γ_8 (trous lourds et légers) est levée, puisque l'énergie de confinement $E(n_z)$ est inversement proportionnelle à la masse effective. C'est ainsi que nous obtenons la structure de bande représentée à droite sur la figure (1.6).

1.3.3 États propres d'une boîte quantique

De même que pour les états propres du puits quantique infini, nous avons réalisé dans l'Annexe B le calcul des états propres, dans le cas simple d'une boîte quantique rectangulaire dont les dimensions L_x , L_y et L_z sont grandes devant le paramètre de maille Δa du réseau cristallin. Nous avons là encore considéré des barrières de potentiel infinies et déterminé les fonctions enveloppe $\chi_{n_x, n_y, n_z}^c(\mathbf{r})$ et $\chi_{n_x, n_y, n_z}^v(\mathbf{r})$ des électrons de conduction et de valence et les énergies de confinement correspondantes :

$$\begin{cases} E_{conf}^c = \frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \\ E_{conf}^v = \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \end{cases} \quad (1.40)$$

où p_x , p_y et p_z sont des entiers indiquant les niveaux d'énergie dans chaque direction de l'espace. Nous voyons ainsi que l'énergie des électrons de conduction et de valence dépend de leur masse effective respective et est donc différente. Leur confinement étant différent, les deux types d'électrons ne ressentent alors pas de la même façon l'interaction du système avec son environnement.

De nombreuses modélisations ont été réalisées pour déterminer les énergies propres des électrons dans une boîte quantique, comme par exemple des boîtes en forme de lentilles ayant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance z , et dont les dimensions dans le plan (xy) sont très supérieures à celle dans la direction z . Ainsi, Jean Yves Marzin et Gérard Bastard ont calculé [56], pour des boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs de base circulaire de 10 nm de rayon, pour 1.5 nm de hauteur, l'énergie de confinement des premiers états de conduction et de valence. Ils ont entre autre trouvé pour l'état fondamental :

$$\begin{cases} E_{1,1,1}^c = 420 \text{ meV} \\ E_{1,1,1}^v = 133 \text{ meV} \end{cases} \quad (1.41)$$

et pour le premier état excité :

$$\begin{cases} E_{2,1,1}^c = E_{1,2,1}^c = 472 \text{ meV} \\ E_{2,1,1}^v = E_{1,2,1}^v = 185 \text{ meV} \end{cases} \quad (1.42)$$

Ce premier état excité est deux fois dégénéré en énergie en raison de la symétrie de révolution autour de l'axe de croissance z de la boîte.

Dans le cas de telles boîtes à symétrie sphérique, l'état fondamental, pour les électrons de valence et de conduction, correspond à un état à symétrie sphérique, similaire à une orbitale atomique de type "s", de moment cinétique $L = 0$. De même, le premier état excité $\chi_{2,1,1}^{c/v}$ ou $\chi_{1,2,1}^{c/v}$ correspond à un état, respectivement de type " p_x " ou " p_y ", tous deux caractérisés par un moment cinétique $L = 1$. Sur la figure (1.8) est ainsi représentée la densité d'états électroniques pour une boîte quantique d'InAs/GaAs réalisée par croissance Stranski-Krastanov. Nous y distinguons les deux états quantifiés S et P, pour la bande de valence et celle de conduction, ainsi que le continuum d'états de la couche de mouillage d'InAs, et enfin le continuum d'états de la matrice de GaAs encapsulant boîtes et couche de mouillage. Mentionnons que si les continuum d'états de conduction et de valence de la couche de mouillage ne présentent pas le profil abrupt en marche d'escalier d'un puits quantique parfait, cela est dû à la rugosité de la couche de mouillage qui est loin d'être uniforme [57, 58].

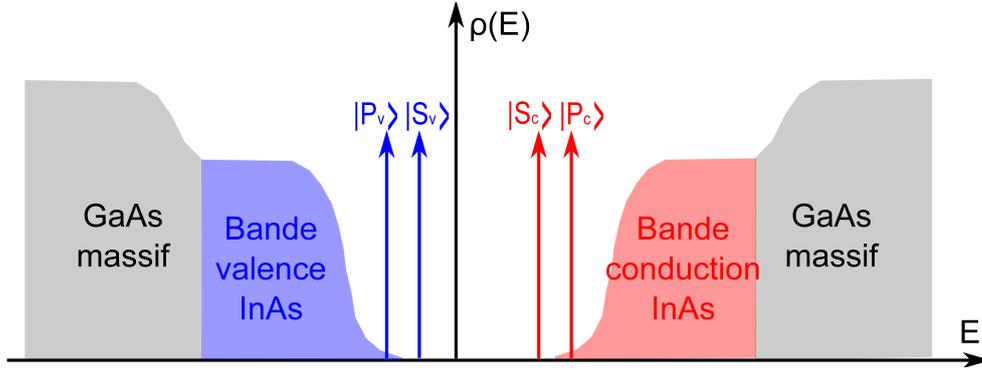


FIGURE 1.8 : Densité d'état typique d'une boîte quantique d'InAs de symétrie de révolution.

Notons finalement que dans les boîtes quantiques, les composantes du vecteur d'onde \mathbf{k} ne sont plus de "bons nombres quantiques" et le système est défini par les nombres quantiques n (indice de bande), p_x , p_y et p_z , et les fonctions d'onde totales des électrons sont de la forme :

$$\begin{cases} \psi_{n,p_x,p_y,p_z}^c(\mathbf{r}) = \chi_{n,p_x,p_y,p_z}^c(\mathbf{r}) u_n^c(\mathbf{r}) \\ \psi_{n,p_x,p_y,p_z}^v(\mathbf{r}) = \chi_{n,p_x,p_y,p_z}^v(\mathbf{r}) u_n^v(\mathbf{r}) \end{cases} \quad (1.43)$$

1.4 Propriétés optiques des semi-conducteurs

1.4.1 Transitions optiques

Nous rentrerons plus précisément dans l'interaction lumière - matière dans le troisième chapitre de ce mémoire et nous nous contenterons pour l'instant d'une description du phénomène en première approche. Intéressons nous aux transitions optiques, provoquées par un champ du type :

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_L \boldsymbol{\epsilon} e^{i\omega t} \quad (1.44)$$

d'amplitude \mathcal{E}_L , de vecteur polarisation $\boldsymbol{\epsilon}$, et de pulsation ω . Nous avons omis la dépendance spatiale du champ car nous nous sommes placés dans l'approximation dipolaire électrique [59] et considérons que le champ varie très lentement par rapport à la période du réseau cristallin. Le hamiltonien d'un électron soumis à ce champ s'écrit dans la jauge de Coulomb sous la forme [59] :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}(t) \quad (1.45)$$

avec :

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_e} \quad (1.46a)$$

$$\hat{H}_{int}(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(t) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(t)}{2m_e} \quad (1.46b)$$

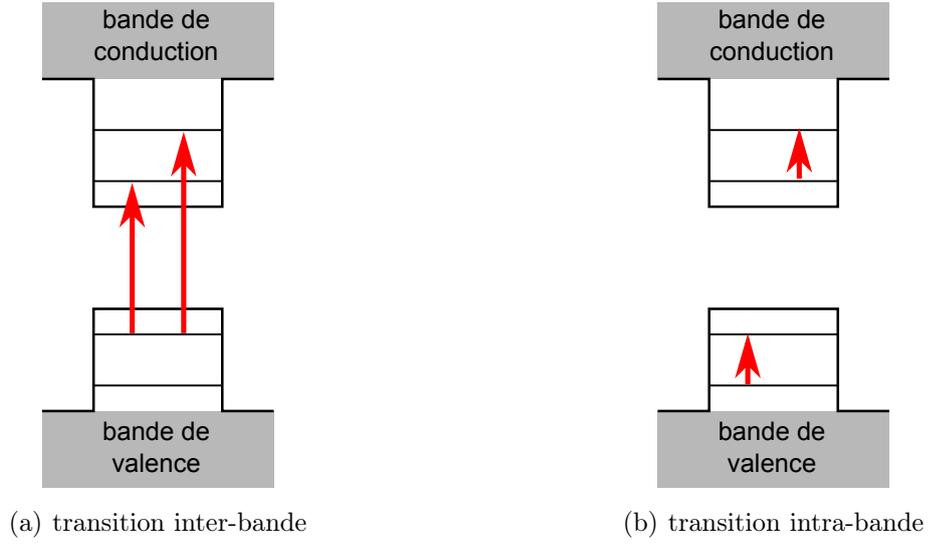


FIGURE 1.9 : Représentation (a) de deux transitions inter-bandes et (b) de deux transitions intra-bande.

où q est la charge de l'électron, m_e sa masse et $\mathbf{A}_\perp(t)$ le potentiel vecteur transverse de la jauge de Coulomb dans laquelle $\mathbf{E}(t) = -d\mathbf{A}_\perp(t)/dt$. Nous ne considérerons que le premier terme de $\hat{H}'_{int}(t)$, décrivant les processus linéaires en fonction du champ incident.

Les transitions optiques entre différents états du système sont dues à la présence de l'opérateur impair $\hat{\mathbf{p}}$. Considérons le hamiltonien :

$$\hat{H}'_{int}(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot (\mathcal{E}_L \boldsymbol{\epsilon} \frac{e^{i\omega t}}{i\omega}) = i \frac{q \mathcal{E}_L}{m_e \omega} e^{i\omega t} (\hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}) \quad (1.47)$$

La probabilité par unité de temps qu'un électron passe d'un état $|\psi_i\rangle$ d'énergie E_i à un état $|\psi_f\rangle$ d'énergie E_f en absorbant un photon est donnée par la règle d'or de Fermi [60, 61] :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}_{i \rightarrow f}(\omega) &= \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \psi_f | \hat{H}'_{int}(t) | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) (\mathcal{F}^{FD}(E_i) - \mathcal{F}^{FD}(E_f)) \\ &= \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{q \mathcal{E}_L}{m_e \omega} \right)^2 |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) (\mathcal{F}^{FD}(E_i) - \mathcal{F}^{FD}(E_f)) \end{aligned} \quad (1.48)$$

où les fonctions \mathcal{F}^{FD} sont les fonctions de distribution de Fermi - Dirac.

Le terme de transition est donc $|\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle|^2$ et en utilisant le formalisme de la fonction enveloppe précédemment introduit, nous avons :

$$\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle = \langle \chi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \chi_i \rangle \langle u_f | u_i \rangle + \langle \chi_f | \chi_i \rangle \langle u_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | u_i \rangle \quad (1.49)$$

où χ est la fonction enveloppe et u la fonction atomique. Nous pouvons donc distinguer deux types de transitions [54], schématisées sur la figure (1.9) :

- si $|\psi_f\rangle = |\psi_i\rangle$, le second terme de (1.49) est nul et l'on parle alors de transitions intra-bandes,

- si $|u_f\rangle \neq |u_i\rangle$, le premier terme de (1.49) est nul et l'on parle alors de transitions inter-bandes.

C'est à ces dernières que nous nous intéresserons par la suite et nous considérerons alors :

$$\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle = \langle \chi_f | \chi_i \rangle \langle u_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | u_i \rangle \quad (1.50)$$

Remarquons qu'il existe ainsi des règles de sélection :

- condition sur la polarisation : il faut que $\hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} \neq \mathbf{0}$
- condition sur les fonctions enveloppes : $|\chi_f\rangle$ et $|\chi_i\rangle$ doivent avoir la même parité.

Plus spécifiquement, intéressons nous à la transition inter-bande fondamentale, du dernier état de la bande de valence au premier de la bande de conduction, soit en reprenant les notations de (B.20) et (B.22) : $\mathcal{E}_{1,1,1}^v \rightarrow \mathcal{E}_{1,1,1}^c$. C'est en effet celle de plus basse énergie de la boîte quantique, permettant ainsi d'avoir le système le moins couplé possible à son environnement. Cette transition peut se représenter sur la figure (1.8) par le passage d'un électron de l'état $|S_v\rangle$ à l'état $|S_c\rangle$, et son énergie est de la forme :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_{inter}^0 &= \mathcal{E}_{1,1,1}^c - \mathcal{E}_{1,1,1}^v \\ &= (V_c - V_v) + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2} \left(\frac{1}{m_c^*} + \frac{1}{m_v^*} \right) \left[\frac{1}{L_x^2} + \frac{1}{L_y^2} + \frac{1}{L_z^2} \right] \\ &= E_g + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2 \mu} \left[\frac{1}{L_x^2} + \frac{1}{L_y^2} + \frac{1}{L_z^2} \right] \\ &= E_g + E_{conf} \end{aligned} \quad (1.51)$$

où E_g est le gap du matériau et μ la masse réduite des électrons de conduction et de valence. Nous voyons donc comment l'énergie des transitions optiques dépend de la taille de la boîte, où plus précisément de la forme du potentiel de confinement dans les trois directions de l'espace. Dans nos échantillons, toutes les boîtes étant différentes, elles ont chacune une transition fondamentale à une énergie différente et le spectre obtenu en les excitant toutes à haute énergie présente de nombreuses raies, chacune correspondant à une boîte.

Notons que sont aussi possibles des transitions de plus haute énergie, de type $P_v \rightarrow P_c$ ou entre des états du continuum de la couche de mouillage (wetting layer) $WL_v \rightarrow WL_c$ ou de GaAs massif $GaAs_v \rightarrow GaAs_c$ (cf figure (1.8)). Dans les échantillons dont nous disposons, ces deux dernières énergies sont respectivement, à température ambiante, d'environ 1.42 eV pour la couche de mouillage et 1.5 eV pour le GaAs massif. Cette dernière valeur est légèrement différente du gap de ce matériau car celui présent dans nos échantillons n'est jamais pur.

Force d'oscillateur

Afin d'exprimer la probabilité par unité de temps qu'un électron passe d'un état $|\psi_i\rangle$ d'énergie E_i à un état $|\psi_f\rangle$ d'énergie E_f en absorbant un photon, nous pouvons définir la quantité sans dimension [22, 23] :

$$\mathcal{F}_{i\leftrightarrow f} = \frac{2 |\langle \psi_f | (\hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}) | \psi_i \rangle|^2}{m_e (E_f - E_i)} = \frac{2 |\langle \psi_f | (\hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon}) | \psi_i \rangle|^2}{m_e \hbar \omega_0} \quad (1.52)$$

désignée par le terme force d'oscillateur, où $\omega_0 = (E_f - E_i)/\hbar$ est la fréquence de Bohr de la transition et m_e la masse de l'électron libre.

Cette quantité est très souvent utilisée en matière condensée car elle peut être reliée à de nombreuses données caractéristiques d'une transition, telle que le module de son moment dipolaire $\boldsymbol{\mu}$ par la relation [62] :

$$\mathcal{F}_{i\leftrightarrow f} = \frac{2 m_e^2 \omega_0^2 \mu^2 / q^2}{m_e (E_f - E_i)} = \frac{2 m_e \omega_0}{q^2 \hbar} \mu^2 \quad (1.53)$$

avec q la charge de l'électron, ou le coefficient d'absorption d'un matériau [22] :

$$\alpha(\omega) = \frac{q^2}{\epsilon_0 m_e} \frac{1}{\omega^2} \sum_{f=1}^{\infty} \mathcal{F}_{i\leftrightarrow f} \quad (1.54)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide. Elle est en outre inversement proportionnelle au temps de vie T_1 de l'état excité $|\psi_f\rangle$ d'un système, auquel elle est reliée par la relation [63, 64] :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{2\pi}{n} \frac{q^2 \omega_0^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^3} \mathcal{F}_{i\rightarrow f} \quad (1.55)$$

où n est l'indice de réfraction du milieu considéré et c la célérité de la lumière dans le vide.

1.4.2 Absorption

Considérons maintenant le problème de l'absorption et notons I_0 l'intensité du rayonnement arrivant sous incidence normale sur la surface de coordonnée $z = 0$ d'un échantillon et $I(z)$ l'intensité à la profondeur z . Le coefficient d'absorption α est défini comme la perte d'intensité $dI(z)$ sur une profondeur dz , soit [22, 61] :

$$dI(z) = -\alpha I(z) dz \quad (1.56)$$

ce qui donne :

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha z} \quad (1.57)$$

Le coefficient d'absorption ne dépend donc que de l'énergie, autrement dit de la pulsation ω , soit $\alpha(\omega)$.

D'après l'expression (1.48) de la probabilité de transition, nous trouvons la perte d'énergie électromagnétique par unité de temps dans le milieu absorbant :

$$\begin{aligned} \Pi(\omega) &= \hbar\omega \sum_{|\psi_i\rangle, |\psi_f\rangle} \mathcal{P}_{i \rightarrow f} \\ &= \frac{2\pi}{\omega} \left(\frac{q \mathcal{E}_L}{m_e} \right)^2 \sum_{|\psi_i\rangle, |\psi_f\rangle} |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \\ &\quad (\mathcal{F}^{FD}(E_i) - \mathcal{F}^{FD}(E_f)) \end{aligned} \quad (1.58)$$

Le coefficient d'absorption est alors égal à cette perte d'énergie, divisée par le flux ϕ_p de photons incidents, et par l'épaisseur dz :

$$\alpha(\omega) = \frac{\Pi(\omega)}{\phi_p dz} = \frac{\Pi(\omega)}{\mathcal{R}_0 \mathcal{S} dz} \quad (1.59)$$

où \mathcal{S} est la section du faisceau incident et \mathcal{R}_0 le module de la valeur moyenne du vecteur de Poynting :

$$\mathcal{R}_0 = |\langle \mathcal{R} \rangle| = \frac{c n \epsilon_0 \mathcal{E}_L^2}{2} \quad (1.60)$$

avec c la célérité de la lumière dans le vide, n l'indice optique du milieu et ϵ_0 la permittivité du vide. Nous trouvons donc l'expression du coefficient d'absorption :

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{\mathcal{S} dz c n \epsilon_0 m_e^2 \omega} \sum_{|\psi_i\rangle, |\psi_f\rangle} |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) (\mathcal{F}^{FD}(E_i) - \mathcal{F}^{FD}(E_f)) \quad (1.61)$$

Comme seules les transitions inter-bandes nous intéressent, et plus précisément si nous considérons à température nulle le passage d'un électron de la bande de valence alors pleine ($\mathcal{F}^{FD}(E_v) = 1$), à la bande de conduction alors vide ($\mathcal{F}^{FD}(E_c) = 0$), le coefficient d'absorption devient :

$$\alpha(\omega) = \frac{1}{\mathcal{S} dz c n \epsilon_0 m_e^2 \omega} \sum_{|\psi_v\rangle, |\psi_c\rangle} |\langle \psi_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_v \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (1.62)$$

avec $\langle \psi_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_v \rangle = \langle \chi_c | \chi_v \rangle \langle u_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | u_v \rangle$.

Dans un système 0D (boîte quantique), l'absorption est théoriquement représentée par une succession de pics de Dirac, chaque pic correspondant à une transition autorisée, mais dans la réalité, en raison du temps de vie fini T_1 de l'état excité et des interactions des électrons avec l'environnement de la boîte et de l'agitation thermique, ces raies subissent un élargissement homogène, au même titre par exemple que les raies des transitions atomiques.

La figure (1.10), issue de la thèse d'Angela Vasanelli [65], montre le calcul de l'absorption inter-bande d'une boîte quantique d'InAs. Dans les notations utilisées, l'indice h fait référence à la notion de trou dans la bande de valence, introduite dans la section suivante

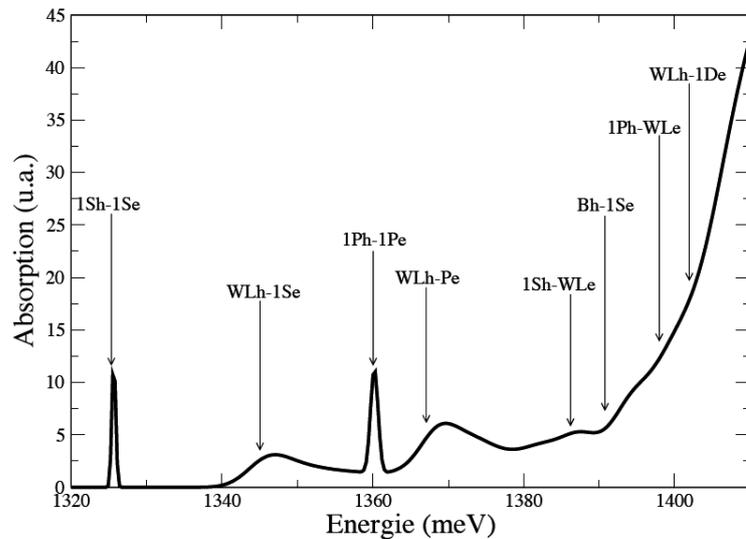


FIGURE 1.10 : *Calcul de l'absorption inter-bande d'une boîte quantique unique prenant en compte les transitions mixtes entre les états discrets de la boîte quantique et le puits quantique constitué par la couche de mouillage [65].*

et l'indice e désigne l'électron de conduction. Les deux transitions discrètes $1S_h - 1S_e$ et $1P_h - 1P_e$, correspondant respectivement aux transitions entre les états $|S_v\rangle$ et $|S_c\rangle$ et $|P_v\rangle$ et $|P_c\rangle$ représentés sur la figure (1.8), sont observées, de même qu'un quasi-continuum qui s'étale entre l'état fondamental $|S_e, S_h\rangle$ et le continuum des états de la couche de mouillage. Ce fond continu, observé en premier par Toda et al. [66] s'explique par la présence de transitions dites croisées entre un état localisé dans la boîte quantique et un état délocalisé dans la couche de mouillage [67]. L'existence de ces transitions mixtes met en évidence que seule la transition fondamentale, $1S_h - 1S_e$, est vraiment isolée de ce quasi-continuum, et c'est une des raisons pour lesquelles nous avons choisi de nous consacrer principalement à l'étude de celle-ci, car elle est de fait caractérisée par un temps de vie et un temps de cohérence plus longs que les autres transitions permises.

1.4.3 Photoluminescence

La photoluminescence est un processus d'émission utilisé comme technique expérimentale permettant l'étude des propriétés électroniques de nano-structures semi-conductrices [22, 23]. Sous l'effet d'un rayonnement incident, dont les photons de pulsation ω_L ont une énergie supérieure à l'énergie de la bande interdite du matériau considéré ($\hbar\omega_L \geq E_g$), un électron passe de la bande de valence à la bande de conduction, laissant ainsi un trou dans la bande de valence. Cette paire électron-trou forme une quasi-particule communément appelée exciton, dont nous étudierons les propriétés dans la partie 1.5. En raison des fluc-

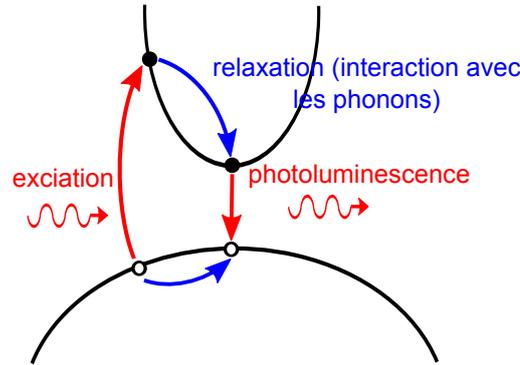


FIGURE 1.11 : Schéma du principe de la photoluminescence.

tuations quantiques du vide, ainsi que de l'interaction du système avec son environnement, après une durée finie T_1 , le temps de vie de l'exciton, l'électron et le trou se recombinent spontanément en émettant un photon. Sur la figure (1.11) est schématisé le principe de la photoluminescence pour un semi-conducteur à "gap direct".

Le processus d'émission spontanée met en jeu les mêmes éléments de matrice que l'absorption, mais sous excitation non résonnante ($\hbar\omega_L > E_g$), l'émission se produit après la relaxation des porteurs (par émissions successives de phonons), beaucoup plus rapide ($\approx 100fs$) que la recombinaison radiative ($\approx 1ns$) [22]. En raison de ces processus de relaxation, la photoluminescence n'est pas un processus symétrique à l'absorption, celle-ci s'effectuant à plus haute énergie. De fait, contrairement aux spectres d'absorption, les spectres de photoluminescence ne donnent pas accès à la structure de bande, mais uniquement aux états de plus basse énergie. Ils sont dominés à basse énergie par la recombinaison d'un électron du premier niveau de la bande de conduction et d'un trou du dernier niveau de la bande de valence et ne comporte en général qu'une seule raie d'émission pour l'exciton neutre, la contribution des états excités de l'exciton, tout comme celle des porteurs libres ne pouvant être observée.

Pour connaître l'intensité de la photoluminescence émise lors de la recombinaison radiative de l'électron et du trou, considérons un système excité optiquement à la résonance ($\omega_L = \omega_0 = (E_f - E_i)/\hbar$) dans un état $|\psi_f\rangle$, qui tend à retourner vers son état d'équilibre $|\psi_i\rangle$ (relaxation) par des processus radiatifs (émission de photons) ou non-radiatifs (phonons ...). La photoluminescence permet d'étudier les photons émis lors de la transition (émission spontanée) d'un état $|\psi_f\rangle$ vers l'état $|\psi_i\rangle$, d'énergie respective E_f et E_i ($E_f > E_i$). D'après (1.48), l'intensité lumineuse émise durant une telle transition est alors

de la forme :

$$\mathcal{I}_{f \rightarrow i}(\omega) \propto \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{q E_l}{m_e \omega} \right)^2 |\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \mathcal{F}^{FD}(E_i) (1 - \mathcal{F}^{FD}(E_i)) \quad (1.63)$$

avec $\langle \psi_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_i \rangle = \langle \chi_f | \chi_i \rangle \langle u_f | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | u_i \rangle$. et pour la transition inter-bande qui nous intéresse :

$$\mathcal{I}_{c \rightarrow v}(\omega) \propto \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{q E_l}{m_e \omega} \right)^2 |\langle \psi_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_v \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (1.64)$$

avec $\langle \psi_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | \psi_v \rangle = \langle \chi_c | \chi_v \rangle \langle u_c | \hat{\mathbf{p}} \cdot \boldsymbol{\epsilon} | u_v \rangle$. Ce processus obéit donc aux mêmes règles de sélection que l'absorption.

Micro-photoluminescence

Contrairement aux atomes dont la transition fondamentale s'effectue à la même énergie pour tous les atomes d'une même espèce, celle-ci s'effectue à une énergie différente pour chaque boîte quantique. Lorsque nous observons le spectre de photoluminescence d'un ensemble de boîtes, nous devrions donc observer un pic de Dirac par boîte. Ce n'est en réalité pas le cas pour deux raisons. Tout d'abord, en raison du temps de vie fini T_1 de l'état excité, il y a un élargissement homogène des raies de luminescence des boîtes, qui prennent alors la forme de fonctions lorentziennes. Cet élargissement peut de plus être amplifié par des processus de déphasage dû à l'interaction des porteurs de charge avec l'environnement extérieur à la boîte. Par exemple, sur la figure (1.12.a) est représenté en rouge l'ajustement de deux raies de luminescence au moyen de fonctions lorentziennes. La deuxième raison découle de la première et de la résolution spectrale de notre dispositif expérimental. En effet, un élargissement dit inhomogène provient du recouvrement des raies d'émission des différentes boîtes. Les raies observées prennent alors la forme de fonctions gaussiennes, comprenant l'émission de plusieurs boîtes, dont les transitions optiques sont spectralement plus rapprochées que la résolution de notre dispositif expérimental.

L'élargissement homogène permet de déterminer le "temps de cohérence" T_2 de l'exciton, qui est inversement proportionnel à la largeur de la raie d'émission. L'élargissement inhomogène est lui un frein à l'étude d'objets uniques, il nous est donc nécessaire de l'éviter autant que possible. Pour ce faire, il nous faut diminuer le nombre de boîtes observées en diminuant leur densité, de même que la taille de la zone d'observation, au moyen d'un système confocal permettant de filtrer spatialement le signal provenant de l'échantillon et de sélectionner uniquement la luminescence issue de boîtes contenues dans une zone de $1 \mu m^2$, soit dans notre cas une trentaine de boîtes dont l'émission est répartie entre 900 nm et 950 nm . Nous parlons alors de "micro-photoluminescence".

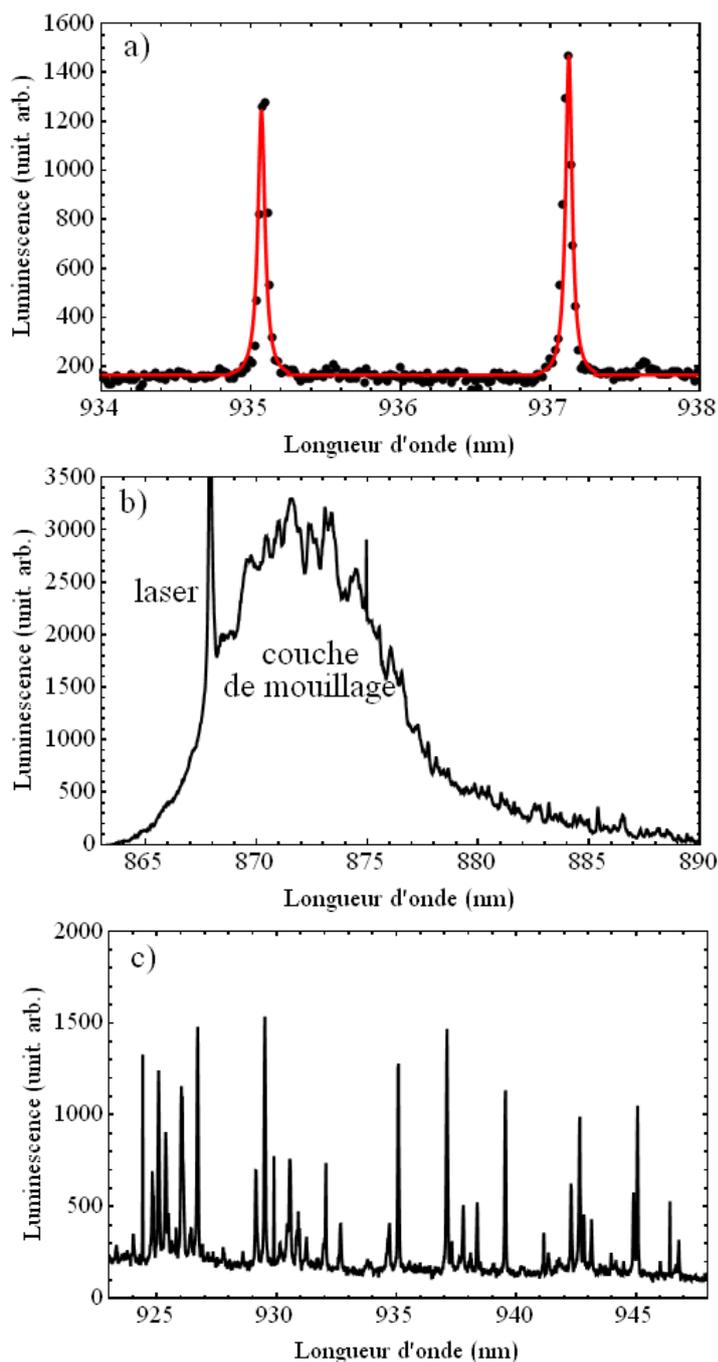


FIGURE 1.12 : Spectres typiques de micro-photoluminescence. Sur la figure (a) est représenté en rouge l'ajustement de deux raies de luminescence de boîtes quantiques d'InAs, excitée de manière non résonnante, au moyen de fonctions lorentziennes. La figure (b) montre le spectre de la couche de mouillage, avec en son pied le laser d'excitation, et la figure (c) celui d'un ensemble de boîtes quantiques individuelles, excitées à la longueur d'onde $\lambda = 868$ nm.

La figure (1.12.b) montre le spectre de la couche de mouillage, s'étendant de 865 nm à 880 nm. Il s'agit de la luminescence d'un puits quantique, pour lequel il est parfois possible de distinguer quelques raies dues à des fluctuations de l'épaisseur de la couche bidimensionnelle, capables de piéger les porteurs de charge. Sur ce spectre, il est en outre possible d'observer le laser d'excitation vers 868 nm. Celui-ci étant ainsi à haute énergie, nous pouvons réaliser des spectres de micro-photoluminescence non résonnants, tel que celui représenté sur la figure (1.12.c) sur lequel nous observons une quinzaine de raies d'intensité assez importante, chaque raie correspondant à l'émission d'une boîte quantique et pouvant être ajustée au moyen d'une fonction lorentzienne, comme l'illustre la figure (1.12.a).

En théorie, une boîte unique possède plusieurs raies, tout d'abord une raie pour sa transition fondamentale et une pour l'émission de chacun de ses états excités. Il est possible d'observer, en plus des excitons neutres, la recombinaison d'excitons chargés constitués de deux trous et d'un électron ou d'un trou et deux électrons, ou de bi-excitons, formés par deux trous et deux électrons. Des études d'excitation de la photoluminescence (PLE), en polarisation et en faisant varier la puissance d'excitation, nous ont cependant montré que sur cet échantillon, la très grande majorité des raies d'intensité assez importante correspondent à la recombinaison fondamentale d'un exciton neutre. Nous détaillerons ces différents points par la suite.

1.5 Excitons dans les semi-conducteurs

1.5.1 Le concept d'exciton

Dans un échantillon sans impuretés, les raies de photoluminescence sont dominées, par les excitons neutres qui sont les excitations électroniques élémentaires [22, 23, 43, 68] dans un semi-conducteur parfait. En effet, à température nulle, la bande de valence est pleine tandis que celle de conduction est vide et une excitation élémentaire fait alors passer un électron de la bande de valence à la bande de conduction en laissant un trou dans la bande de valence. L'électron et le trou, de charge opposée, "tournent" alors l'un autour de l'autre, à l'image de l'électron et du proton de l'atome d'hydrogène, l'interaction coulombienne à longue portée étant à l'origine de la liaison de la paire électron-trou. L'énergie de liaison correspondante étant ainsi celle de l'exciton.

En matière condensée, deux types d'excitons peuvent être distingués. D'une part les excitons de Wannier [69], aussi appelés excitons libres, représentés sur la figure (1.13.a), qui sont principalement observés dans les semi-conducteurs. Ils ont un large rayon qui s'étend sur plusieurs mailles élémentaires, ce sont des états délocalisés sur l'ensemble de réseau, à travers lequel ils bougent librement. D'autre part, dans les cristaux moléculaires



FIGURE 1.13 : Représentation schématique d'un exciton de Wannier et d'un exciton de Frenkel.

par exemple, il est possible de trouver un autre type d'excitons, les excitons de Frenkel [70], dits fortement liés et représentés sur la figure (1.13.b). Ceux-ci possèdent un rayon beaucoup plus faible que celui des excitons de Wannier, de l'ordre de grandeur d'une cellule unitaire. Il s'agit de ce fait d'états localisés, fortement liés à un atome du réseau.

Pour qu'un exciton stable se forme, il faut que le potentiel attractif entre l'électron et le trou soit suffisant pour vaincre l'agitation thermique, qui à température ambiante est de l'ordre de $k_B T \approx 25 \text{ meV}$. Cette énergie est donc supérieure à l'énergie de liaison d'environ 10 meV des excitons de Wannier, qui nécessitent de fait un dispositif cryogénique pour être observés. Les excitons de Frenkel en revanche, avec leur énergie de liaison de l'ordre de 100 meV à 1 eV peuvent être stables à température ambiante.

Par la suite nous ne considérerons que le cas des excitons de Wannier, c'est à dire libres, qui sont les seuls rencontrés dans nos structures. Cette "liberté" des porteurs de charge justifie dans nos système le calcul des états électroniques au moyen d'une méthode $\mathbf{k.p}$, tandis que la méthode des liaisons fortes est elle plus adaptée aux excitons de Frenkel.

Le terme d'exciton, bien qu'il soit très souvent utilisé, est généralement usurpé dans le cas d'une boîte quantique. En effet, dans un exciton l'électron et le trou sont liés par interaction coulombienne, or dans une boîte quantique auto-organisée d'InAs/GaAs, le rayon de Bohr de l'exciton ($\approx 10 \text{ nm}$ dans une nanostructure) est du même ordre de grandeur ou supérieur aux dimensions de la boîte ($\approx 10 \text{ nm}$ de diamètre), l'électron et le trou ne sont donc pas uniquement liés par interaction coulombienne, mais également par le potentiel de confinement, plus important que cette dernière. Nous ne devrions donc pas parler d' "exciton", même si nous continuerons à utiliser ce terme par simplicité, mais seulement de "paire électron - trou" [71].

1.5.2 Correspondance électron de valence - trou

Considérons un semi-conducteur à gap direct, décrit au voisinage du centre de zone par les masses effectives m_c^* pour la bande de conduction et m_v^* pour la bande de valence.

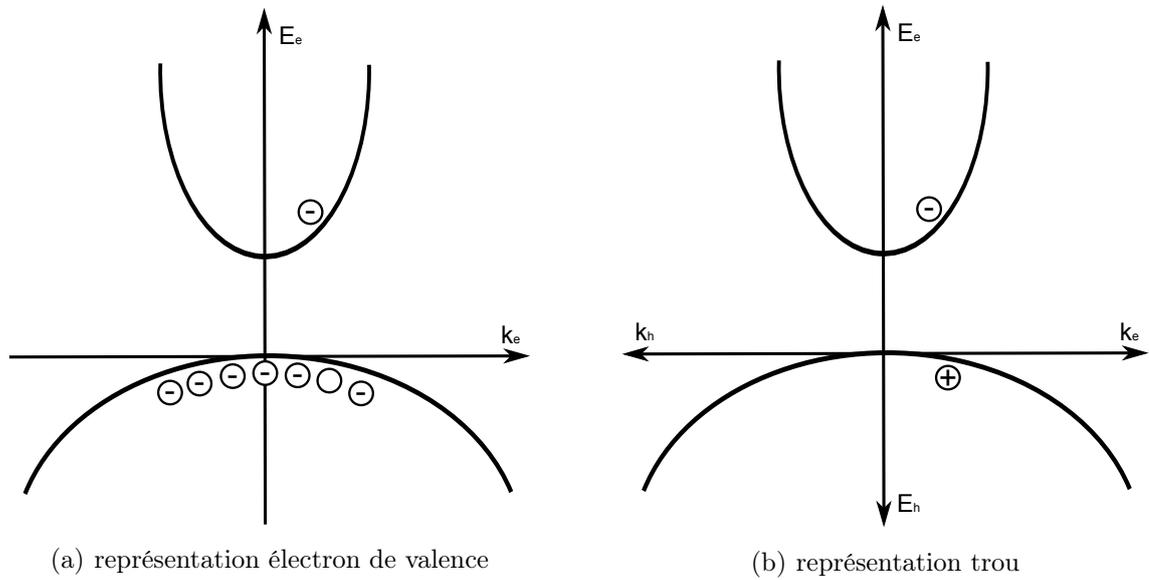


FIGURE 1.14 : *Equivalence entre a) la représentation électron de valence et b) la représentation trou.*

Soit N le nombre de places dans la bande de valence (de l'ordre de 10^{23} cm^{-3}). À l'instant initial nous avons donc, à température nulle, N électrons dans la bande de valence et 0 électrons dans la bande de conduction. Le semi-conducteur est dans son état fondamental formé de 0 trous et N électrons. Le premier état excité correspond au passage d'un électron de la bande de valence, où il ne reste alors que $N - 1$ électrons, à la bande de conduction. La définition du trou h^+ peut s'exprimer en fonction de celle d'électron de valence e_v^- de la manière suivante :

$$\begin{aligned} 0 \ h^+ &= N \ e_v^- \\ 1 \ h^+ &= (N - 1) \ e_v^- = N \ e_v^- - e_v^- \end{aligned} \quad (1.65)$$

Grâce à ce formalisme, au lieu de manipuler une fonction d'onde à N particules, il suffit d'antisymétriser une fonction d'onde à deux particules, et au lieu de considérer l'énergie d'échange entre l'électron de conduction et les $(N - 1)$ électrons de valence, nous considérerons l'énergie d'échange électron - trou [43].

Énergie du trou

Intéressons nous maintenant à l'énergie d'un trou. Considérons E_0 , l'énergie de l'état fondamental (bande de valence pleine, bande de conduction vide) et $E_g = E_c - E_v$ l'énergie de bande interdite du matériau, avec E_c l'énergie du bas de la bande de conduction et E_v l'énergie du haut de la bande de valence.

Après excitation, un électron e_c^- d'énergie $E(e_c^-)$ est créé dans la bande de conduction,

tandis qu'un électron e_v^- d'énergie $E(e_v^-)$ est détruit dans la bande de valence, avec :

$$\begin{cases} E(e_c^-) = E_c + \mathcal{E}_{c\mathbf{k}_c} \\ E(e_v^-) = E_v - \mathcal{E}_{v\mathbf{k}_v} \end{cases} \quad (1.66)$$

où $\mathcal{E}_{c\mathbf{k}_c}$ et $\mathcal{E}_{v\mathbf{k}_v}$ représentent respectivement l'énergie cinétique de la bande de conduction à partir de E_c , pour un vecteur d'onde \mathbf{k}_c et l'énergie cinétique de la bande de valence à partir de E_v , pour un vecteur d'onde \mathbf{k}_v , telles que $\mathcal{E}_{c\mathbf{k}_c} > 0$ et $\mathcal{E}_{v\mathbf{k}_v} > 0$.

En supposant par ailleurs que les interactions électrostatiques sont les mêmes pour l'état fondamental et le premier état excité (nous négligeons donc pour l'instant l'interaction coulombienne directe et d'échange), l'énergie de ce dernier s'écrit :

$$E_1 = E_0 + (E(e_c^-) - E(e_v^-)) \quad (1.67)$$

soit :

$$E_1 - E_0 = E(e_c^-) - E(e_v^-) = E_g + \mathcal{E}_{c\mathbf{k}_c} + \mathcal{E}_{v\mathbf{k}_v} \quad (1.68)$$

et en introduisant $E(h^+)$, l'énergie du trou :

$$E_1 - E_0 = E(e_c^-) + E(h^+) = E_g + \mathcal{E}_{c\mathbf{k}_c} + \mathcal{E}_{h\mathbf{k}_h} \quad (1.69)$$

Pour les trous, l'énergie est donc de signe opposé à celui des électrons de valence (et de conduction d'ailleurs), comme le montre la figure (1.14) qui schématise l'équivalence entre la représentation électron de valence et la représentation trou.

Vecteur d'onde du trou

Dans l'état fondamental (bande de valence pleine), le vecteur d'onde total du système est tel que :

$$\mathbf{k}_0 = \sum_i \mathbf{k}_{vi} = 0 \quad (1.70)$$

Le vecteur d'onde de l'état excité doit, quant à lui, être le même en convention électron de valence et en convention trou, d'où :

$$\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_c - \mathbf{k}_v = \mathbf{k}_0 + \mathbf{k}_c + \mathbf{k}_h \quad (1.71)$$

Le vecteur d'onde du trou est donc opposé à celui de l'électron de valence, ainsi que l'illustre la figure (1.14).

1.5.3 Énergie de l'exciton

Sans prendre en compte l'interaction coulombienne entre l'électron de conduction et le trou (en réalité entre l'électron de conduction et les $(N - 1)$ électrons de la bande de valence), la fonction d'onde de la paire excitée peut s'écrire :

$$\psi_X(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \psi_{c\mathbf{k}_c}(\mathbf{r}_e) \psi_{v\mathbf{k}_h}(\mathbf{r}_h) \quad (1.72)$$

où $\psi_{c\mathbf{k}_e}(\mathbf{r}_e)$ est la fonction d'onde de l'électron de conduction et $\psi_{v\mathbf{k}_h}(\mathbf{r}_h)$ la fonction d'onde du trou, donnée par le conjugué de Kramers [43] de la fonction d'onde de l'électron de valence enlevé.

En réalité, en raison de l'interaction électrostatique entre deux particules de charge opposée, nous écrirons cette fonction d'onde (dans le cadre de l'approximation de la fonction enveloppe) sous la forme [43] :

$$\psi_{n\mathbf{k}_X}^X(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \Phi_{n\mathbf{k}_X}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) u_{c\mathbf{0}} u_{v\mathbf{0}} \quad (1.73)$$

où $\mathbf{k}_X = \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_h$ est le vecteur d'onde de l'exciton et où nous avons fait l'approximation $u_{c\mathbf{k}} \approx u_{c\mathbf{0}}$ et $u_{v\mathbf{k}} \approx u_{v\mathbf{0}}$. Pour déterminer l'équation aux valeurs propres de la fonction $\Phi_{n\mathbf{k}_X}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$, nous pouvons faire une analogie avec le cas de l'atome d'hydrogène. Le hamiltonien effectif de l'exciton, dans l'approximation de la masse effective, s'écrit ainsi :

$$\hat{H}_X = \frac{\mathbf{p}_e^2}{2 m_e^*} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2 m_h^*} + V_{coul}(|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|) = \frac{\mathbf{p}_e^2}{2 m_e^*} + \frac{\mathbf{p}_h^2}{2 m_h^*} - \frac{1}{\epsilon} \frac{q^2}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \quad (1.74)$$

où m_e^* est la masse effective de l'électron de conduction et $m_h^* = m_v^*$ est la masse effective du trou, qui est la même que celle de l'électron de valence et ϵ_r la constante diélectrique du milieu. Comme pour le traitement de l'atome d'hydrogène, plaçons nous dans le référentiel du centre de masse, en posant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h \\ \mathbf{R} = \frac{m_e^* \mathbf{r}_e + m_h^* \mathbf{r}_h}{M_X} \\ M_X^* = m_e^* + m_h^* \\ \frac{1}{\mu_X^*} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*} \end{array} \right. \quad (1.75)$$

L'équation de Schrödinger indépendante du temps prend alors la forme :

$$\left(\frac{\mathbf{P}_R^2}{2 M_X^*} + \frac{\mathbf{p}_r^2}{2 \mu_X^*} - \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q^2}{|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|} \right) \Phi_{n\mathbf{k}_X} = \mathcal{E}_{n\mathbf{k}_X} \Phi_{n\mathbf{k}_X} \quad (1.76)$$

et peut se découpler en posant :

$$\Phi_{n\mathbf{k}_X}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{V}}} e^{i \mathbf{k}_X \cdot \mathbf{R}} \phi_n(\mathbf{r}) \quad (1.77)$$

où $\phi_n(\mathbf{r}) = \phi_{nlm}(\mathbf{r})$ est la solution d'une équation de type hydrogénoïde. Par exemple, pour l'état $\mathbf{n} = 1s$ dans le semi-conducteur massif :

$$\Phi_{1s, \mathbf{k}_X}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{V}}} e^{i \mathbf{k}_X \cdot \mathbf{R}} \frac{e^{-r/a_X}}{\sqrt{\pi} a_X^3} \quad (1.78)$$

où a_X est le rayon de Bohr de l'exciton :

$$a_X = \frac{\hbar^2}{\mu_X^* (q^2/\epsilon_r)} = \frac{m_e^* \epsilon}{\mu_X^*} a_0 \quad (1.79)$$

avec $a_0 = 0.53 \text{ \AA}$ le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène. Une rapide approximation numérique, en considérant $m_h^* \gg m_e^*$ (pour un trou lourd) et donc $\mu_X \approx m_e^*$, donne pour ordre de grandeur quelques centaines de fois le rayon de Bohr de l'hydrogène. Les valeurs correspondant au GaAs et à l'InAs sont données dans le tableau (1.3).

paramètres	GaAs	InAs
a_X (nm)	13	35
\mathcal{R}_X (meV)	4.2	1.7

TABLE 1.3 : Tableau récapitulatif des caractéristiques de l'exciton dans GaAs et d'InAs massif.

Les énergies associées aux fonctions d'onde (1.73) sont de la forme :

$$E_{n,\mathbf{k}_X} = E_g + E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_X^2}{2M_X^*} \quad (1.80)$$

avec :

$$E_{n,\mathbf{0}} = -\frac{1}{n^2} \frac{\mu_X}{2\hbar^2} \left(\frac{q^2}{\epsilon} \right)^2 = -\frac{1}{n^2} \mathcal{R}_X \quad (1.81)$$

où \mathcal{R}_X est l'énergie de Rydberg de l'exciton, pouvant s'exprimer comme :

$$\mathcal{R}_X = \frac{\mu_X}{2\hbar^2} \left(\frac{q^2}{\epsilon} \right)^2 = \frac{\mu_X^*}{m_e^* \epsilon_r^2} \mathcal{R} \quad (1.82)$$

avec $\mathcal{R} = 13.6\text{eV}$ est la constante de Rydberg de l'atome d'hydrogène. Nous pouvons donc évaluer que de manière générale E_X est de l'ordre du millième de Rydberg et dans le tableau (1.3) sont données les énergies de Rydberg dans le GaAs massif et l'InAs massif.

1.5.3.a États propres excitoniques sans interaction d'échange

Lorsque l'on tient compte de leur spin, les électrons de la bande de conduction de moment cinétique total $J = 1/2$ et de projection $m_J = \pm 1/2$, et les trous de la bande Γ_8 de moment cinétique total $J = 3/2$ et de projection $m_J = \pm 1/2; \pm 3/2$, donnent naissance à huit paires électron - trou, dégénérées en énergie, dont les moments cinétiques sont fixés par la partie atomique de la fonction d'onde [54] :

– pour les trous lourds :

$$\begin{array}{ll} |+\frac{3}{2}; +\frac{1}{2}\rangle & |-\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}\rangle \\ |+\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}\rangle & |-\frac{3}{2}; +\frac{1}{2}\rangle \end{array} \quad (1.83)$$

– pour les trous légers :

$$\begin{array}{ll} |+\frac{1}{2}; +\frac{1}{2}\rangle & |-\frac{1}{2}; -\frac{1}{2}\rangle \\ |+\frac{1}{2}; -\frac{1}{2}\rangle & |-\frac{1}{2}; +\frac{1}{2}\rangle \end{array} \quad (1.84)$$

où nous avons utilisé une notation du type $|m_{J_h}; m_{J_e}\rangle$.

Dans le cas des excitons "lourds", c'est à dire formés par l'appariement d'un électron de conduction et d'un trou lourd (1.83), la transition fondamentale est quatre fois dégénérée et les paires électron - trou représentées par les deux premiers états de (1.83) ont un moment cinétique total $m_J = \pm 2$, tandis que les deux autres ont un moment cinétique total $m_J = \pm 1$, comme représenté sur la figure (1.15). Dans l'approximation dipolaire électrique, seuls les états $m_J = \pm 1$ peuvent se coupler à la lumière. Ces derniers sont de fait qualifiés de "brillants", tandis que les états $m_J = \pm 2$ qui eux ne peuvent être couplés à la lumière, sont qualifiés de "noirs". Lors du processus d'émission, du fait de la conservation du spin dans les transitions optiques, les états brillants confèrent leur moment cinétique aux photons émis lors de la recombinaison radiative de la paire électron-trou, qui sont alors polarisés circulairement droite (σ_-) ou gauche (σ_+).

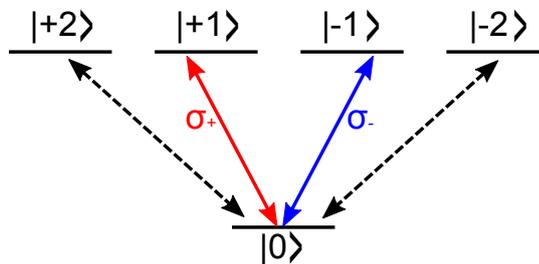


FIGURE 1.15 : Règles de sélection optique pour une boîte symétrique, en négligeant l'interaction coulombienne d'échange.

Nous avons cependant jusqu'à présent omis l'interaction coulombienne entre l'électron de conduction et le trou de la bande de valence de charge opposée, qui confère à la paire électron - trou une structure fine, par levée de la dégénérescence entre les quatre états précédents.

1.5.3.b Conséquences de l'interaction d'échange dans un système isotrope

L'origine de l'interaction coulombienne d'échange est présentée dans l'Annexe C et nous nous intéressons ici à ses conséquences sur les états propres d'une boîte quantique, en représentation électron de valence. Considérons pour l'instant uniquement les états :

– de la bande de conduction :

$$\begin{cases} u_{10} = \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c = i |S \uparrow\rangle \\ u_{20} = \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c = i |S \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.85)$$

– de la bande de valence de moment $m_J = \pm 3/2$:

$$\begin{cases} u_{50} = \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v = \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \\ u_{60} = \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v = -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.86)$$

soit en prenant en compte les fonctions enveloppe χ_c et χ_v des électrons de conduction et de valence :

$$\begin{aligned} & i |S \uparrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & & i |S \downarrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle \\ & \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle & & -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle \end{aligned} \quad (1.87)$$

Étant donné que l'interaction coulombienne n'influe pas sur le spin des électrons, l'interaction directe ne peut coupler entre eux que deux électrons de conduction de même spin et deux électrons de valence de même spin, tandis que l'interaction d'échange ne peut elle coupler qu'un électron de valence et un électron de conduction de même spin et un électron de conduction et un électron de valence de même spin. Autrement dit, en reprenant le terme $\langle \psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \psi_{v'c'} \rangle$, l'interaction directe est non nulle lorsque les états c et c' sont de même spin, tout comme les états v et v' , tandis que l'interaction d'échange est non nulle lorsque les états v' et c' sont de même spin, tout comme les états v et c .

Comme dans les quatre états à notre disposition, les deux états de conduction sont de spin opposé, de même que les deux états de valence, l'interaction directe ne peut coupler un exciton donné qu'avec lui même. Dans la base des états excitoniques $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$, avec :

$$\begin{cases} |+1\rangle : & i |S \downarrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle \\ |-1\rangle : & i |S \uparrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle \\ |+2\rangle : & i |S \uparrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle \\ |-2\rangle : & i |S \downarrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \otimes |\chi_v\rangle \end{cases} \quad (1.88)$$

le hamiltonien \hat{H}_{coul}^{dir} est donc diagonal et nous pouvons calculer les éléments de matrice :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle +1 | \hat{H}_{coul}^{dir} | +1 \rangle = \alpha\beta \left(-i \langle S | \otimes -\frac{1}{\sqrt{2}} \langle (X - iY) | \right) \hat{H}_{coul}^{dir} \left(i | S \rangle \otimes -\frac{1}{\sqrt{2}} | (X - iY) \rangle \right) \\ \langle -1 | \hat{H}_{coul}^{dir} | -1 \rangle = \alpha\beta \left(-i \langle S | \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} \langle (X + iY) | \right) \hat{H}_{coul}^{dir} \left(i | S \rangle \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} | (X + iY) \rangle \right) \\ \langle +2 | \hat{H}_{coul}^{dir} | +2 \rangle = \alpha\beta \left(-i \langle S | \otimes -\frac{1}{\sqrt{2}} \langle (X - iY) | \right) \hat{H}_{coul}^{dir} \left(i | S \rangle \otimes -\frac{1}{\sqrt{2}} | (X - iY) \rangle \right) \\ \langle -2 | \hat{H}_{coul}^{dir} | -2 \rangle = \alpha\beta \left(-i \langle S | \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} \langle (X + iY) | \right) \hat{H}_{coul}^{dir} \left(i | S \rangle \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} | (X + iY) \rangle \right) \end{array} \right. \quad (1.89)$$

où nous avons posé pour les fonctions enveloppe :

$$\left\{ \begin{array}{l} \langle \chi_c | \hat{H}_{coul}^{dir} | \chi_c \rangle = \alpha \\ \langle \chi_v | \hat{H}_{coul}^{dir} | \chi_v \rangle = \beta \end{array} \right. \quad (1.90)$$

En considérant les symétries des états $|S\rangle$, $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, nous trouvons les quatre éléments de matrice égaux, et nous pouvons écrire dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$:

$$\hat{H}_{coul}^{dir} = \begin{pmatrix} -\zeta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\zeta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\zeta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\zeta \end{pmatrix} \quad (1.91)$$

L'interaction coulombienne directe a donc uniquement pour effet de lier la paire électron-trou, abaissant ainsi son énergie de recombinaison radiative d'une quantité ζ valant quelques dizaines de meV [65].

Dans le cas des processus d'échange, le terme $\langle \psi_{vc} | \hat{H}_{coul}^{ech} | \psi_{v'c'} \rangle$ est non nul uniquement si les électrons v' et c' ont le même spin, de même que les électrons v et c . Nous voyons donc d'après (1.88) que seuls peuvent être liés entre eux les états brillants $|\pm 1\rangle$ d'une part et les états noirs $|\pm 2\rangle$ d'autre part. Pour des raisons de symétrie, nous pouvons écrire de façon générique dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$ [72] :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_{FSS} & 0 & 0 \\ \delta_{FSS} & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.92)$$

où Δ_0 est l'énergie séparant les états brillants des états noirs, δ_2 l'énergie séparant les états noirs de spin opposé et δ_{FSS} le splitting de structure fine, séparant les états brillants entre eux.

Le hamiltonien \hat{H}_{coul} commute avec le moment cinétique total de l'exciton, qui prend en compte aussi bien la partie atomique que la fonction enveloppe :

$$\mathbf{J} = \mathbf{L}_{at} + \mathbf{S}_{at} + \mathbf{L}_{env} = \mathbf{J}_{at} + \mathbf{L}_{env} \quad (1.93)$$

de même qu'avec sa projection m_J . L'interaction coulombienne ne peut donc coupler entre eux des états de projection m_J différente. Rappelons que les notations $|\pm 1\rangle$ et $|\pm 2\rangle$ désignent en fait $|m_{J_{at}} = \pm 1\rangle \otimes |\chi_c, \chi_v\rangle$ et $|m_{J_{at}} = \pm 2\rangle \otimes |\chi_c, \chi_v\rangle$.

La partie enveloppe variant beaucoup plus lentement que la partie atomique, deux échelles spatiales entrent en jeu et nous pouvons distinguer deux types d'interaction d'échange, l'une dite "courte portée", agissant à l'échelle de la fonction atomique, et l'autre dite "longue portée", agissant à l'échelle des variations de la fonction enveloppe [73].

Interaction d'échange courte portée

C'est la partie de l'interaction coulombienne d'échange agissant à l'échelle de la maille élémentaire du réseau cristallin et n'affectant donc que la partie atomique de la fonction d'onde. De fait, à cette échelle, le hamiltonien \hat{H}_{coul} commute avec le moment cinétique atomique \mathbf{J}_{at} , ainsi qu'avec sa projection $m_{J_{at}}$ et cette interaction courte portée ne peut ainsi coupler entre eux que les états de même $m_{J_{at}}$. Le hamiltonien à courte portée $\hat{H}_{coul}^{ech,cp}$ est donc diagonal dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$ et s'écrit pour des raisons de symétrie :

$$\hat{H}_{coul}^{ech,cp} = \begin{pmatrix} \Delta_{cp} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_{cp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.94)$$

soit en redéfinissant l'origine des énergies :

$$\hat{H}_{coul}^{ech,cp} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_{cp} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_{cp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_{cp} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta_{cp} \end{pmatrix} \quad (1.95)$$

Interaction d'échange longue portée

C'est la partie de l'interaction coulombienne d'échange agissant à l'échelle de la fonction enveloppe. Dans le cas d'une boîte quantique pour laquelle le potentiel de confinement est de symétrie D_{2v} , c'est à dire, comme l'illustre la figure (1.16.a), possédant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance z , le moment cinétique des fonctions enveloppe est nul, puisque celle de l'électron de conduction comme celle de l'électron de valence sont toutes deux de symétrie s . Le moment cinétique total est une fois encore déterminé par la

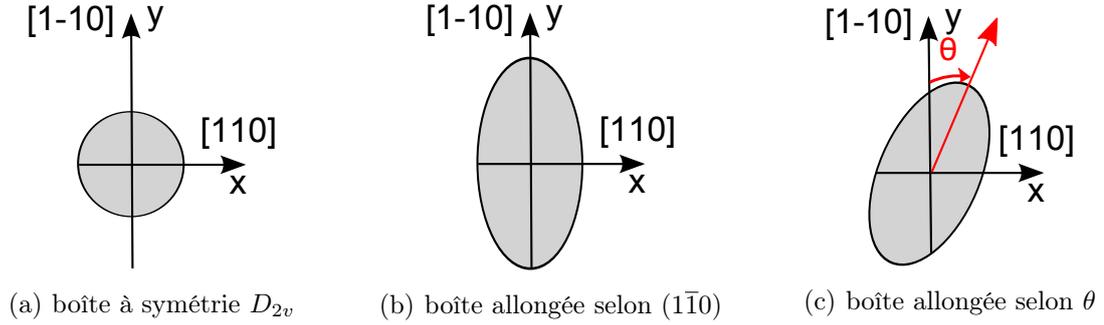


FIGURE 1.16 : Schématisation des différentes symétries de potentiel de confinement envisagées, dans le plan des boîtes. (a) Symétrie de révolution autour de l'axe de croissance, (b) élongation selon un axe cristallographique et (c) élongation selon une direction définie par l'angle θ .

partie atomique et le hamiltonien longue portée $\hat{H}_{coul}^{ech,lp}$ est diagonal dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$. Il s'écrit, pour des raisons de symétrie et en redéfinissant l'origine des énergies :

$$\hat{H}_{coul}^{ech,lp} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_{lp} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_{lp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_{lp} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta_{lp} \end{pmatrix} \quad (1.96)$$

En ayant pour l'instant considéré uniquement l'effet de l'interaction d'échange dans le cas d'une boîte dont le potentiel de confinement possède une symétrie de révolution autour de l'axe z , nous trouvons donc :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.97)$$

Il y a donc levée de dégénérescence entre les états noirs et les états brillants qui sont maintenant séparés d'une énergie de plusieurs centaines de μeV ($400 \mu eV$ pour des boîtes d'InAs/GaAs [72], $1000 \mu eV$ pour de boîtes de CdTe/ZnTe [74]). Notons que cette énergie $\Delta_0 = \Delta_{cp} + \Delta_{lp}$ dépend à la fois d'une contribution courte portée et d'une contribution longue portée, l'importance relative des deux contributions étant encore sujet à débat [74, 75].

1.5.4 Boîte anisotrope, structure fine de l'exciton

Si maintenant, comme l'illustre la figure (1.16.b), il y a brisure de la symétrie du potentiel de confinement d'une boîte quantique, en raison par exemple de l'anisotropie

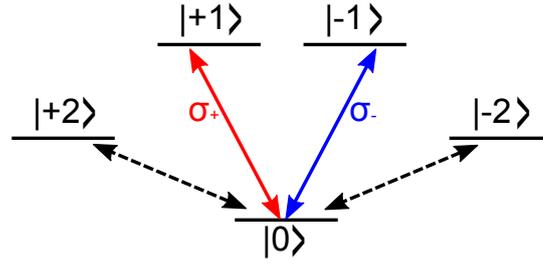


FIGURE 1.17 : Règles de sélection optique pour une boîte à potentiel de confinement symétrique, en considérant l'interaction coulombienne d'échange.

de forme de la boîte (base elliptique) ou d'une anisotropie de sa composition, ou encore de l'anisotropie du champ des déformations, les fonctions enveloppe sont modifiées et ne possèdent plus une symétrie s . Dans ce cas, nous n'avons plus $\mathbf{L}_{env} = \mathbf{0}$, et l'interaction d'échange longue portée est alors capable de coupler entre eux les états brillants, à condition d'avoir au moins la projection $m_{L_{env}} = \pm 2$ (symétrie d) pour compenser la variation de moment atomique survenant lors du passage entre les états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ [76]. Le hamiltonien longue portée peut alors s'écrire de manière générique :

$$\hat{H}_{coul}^{ech,lp} = \begin{pmatrix} \Delta_{lp} & \delta_{lp} & 0 & 0 \\ \delta_{lp} & \Delta_{lp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.98)$$

et en redéfinissant l'origine des énergies, le hamiltonien d'échange total peut se mettre sous la forme :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_{FSS} & 0 & 0 \\ \delta_{FSS} & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.99)$$

où δ_{FSS} est le splitting d'échange longue portée anisotrope, que nous appellerons parfois simplement splitting d'échange ou splitting de structure fine [77], et qui dans les boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs peut valoir de $10 \mu eV$ à $250 \mu eV$ en fonction de la boîte [72, 78].

Pour un potentiel de confinement anisotrope autour de l'axe de croissance z , la dégénérescence entre les états brillants est donc levée et le hamiltonien (1.103) n'étant plus diagonal dans la base des états $|\pm 1\rangle$, ceux-ci ne sont plus états propres du système excitonique. Les deux nouveaux états brillants stationnaires sont des combinaisons linéaires des états précédents, de la forme :

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle \pm |-1\rangle) \quad (1.100)$$

En considérant un potentiel de confinement à symétrie réduite possédant deux axes principaux x et y correspondant aux directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$, nous pouvons écrire :

$$\begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \end{cases} \quad (1.101)$$

Nous voyons ainsi que les photons, précédemment polarisés circulairement σ_+ et σ_- sont maintenant polarisés linéairement Π_X et Π_Y :

$$\begin{cases} \frac{1}{i\sqrt{2}}(\sigma_+ - \sigma_-) \rightarrow \Pi_X \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(\sigma_+ + \sigma_-) \rightarrow \Pi_Y \end{cases} \quad (1.102)$$

Le hamiltonien coulombien d'échange s'écrit dans la nouvelle base $\{|X\rangle, |Y\rangle\}$

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 2\Delta_0 - \delta_{FSS} & 0 \\ 0 & 2\Delta_0 + \delta_{FSS} \end{pmatrix} \quad (1.103)$$

et les deux états de structure fine $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont séparés en énergie par le splitting de structure fine δ_{FSS} . Sur la figure (1.18) sont schématisées les règles de sélection optiques pour une boîte quantique de potentiel de confinement anisotrope, tandis que sur la figure (1.19) est résumé l'effet de l'interaction coulombienne sur l'énergie des états propres excitoniques $|\pm 1\rangle$ et $|\pm 2\rangle$.

En considérant finalement le cas le plus général, illustré par la figure (1.16.c), d'un potentiel de confinement dont les axes principaux x' et y' forment un angle θ avec respectivement la direction $[110]$ et la direction $[1\bar{1}0]$, le hamiltonien d'échange total s'écrit :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_{FSS} e^{-2i\theta} & 0 & 0 \\ \delta_{FSS} e^{2i\theta} & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.104)$$

et les deux états propres de structure fine :

$$\begin{cases} |X'\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - e^{2i\theta} |-1\rangle) \\ |Y'\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + e^{2i\theta} |-1\rangle) \end{cases} \quad (1.105)$$

Les photons émis lors de la recombinaison des excitons $|X'\rangle$ et $|Y'\rangle$ sont alors polarisés linéairement $\Pi_{X'}$ et $\Pi_{Y'}$, selon des directions inclinées d'un angle θ par rapport aux directions x et y .

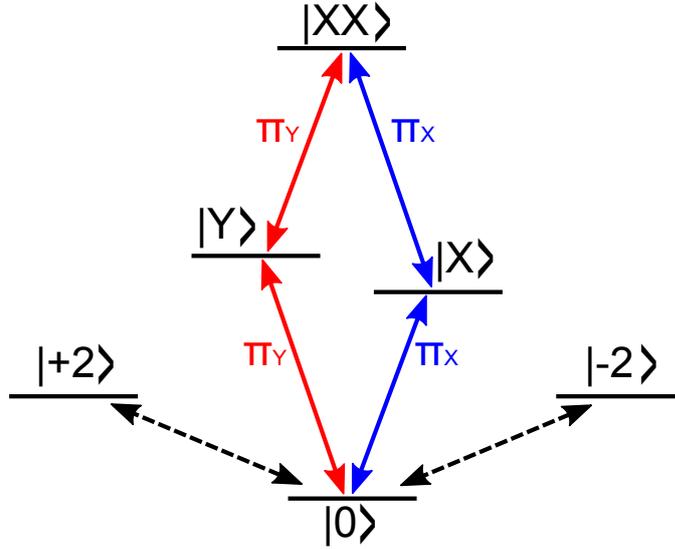


FIGURE 1.18 : Règles de sélection optique pour une boîte à potentiel de confinement sans symétrie de révolution autour de l'axe de croissance z , en considérant l'interaction coulombienne d'échange. Sont représentés les deux états noirs $|\pm 2\rangle$, les deux états brillant $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ et le biexciton $|XX\rangle$.

Notons que même dans le cas d'un confinement à symétrie D_{2v} , l'exciton neutre possède toujours une structure fine, en raison de la symétrie C_{2v} du cristal blende de zinc sous-jacent [79, 80]. Celle-ci est alors caractérisée par un splitting d'échange anisotrope d'environ $4 \mu eV$, dû à l'absence de centre de symétrie dans le cristal.

En réalité, l'interaction d'échange électron-trou est plus complexe et la composante d'échange courte portée couple également entre eux les états noirs et lève la dégénérescence entre $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$. En effet, l'interaction d'échange courte portée entre un trou de moment J_h et un électron de moment J_e s'écrit sous la forme [72, 81, 82, 83] :

$$H_{coul}^{ech,cp} = - \sum_{i=x,y,z} (aJ_{h,i}J_{e,i} + b_i J_{h,i}^3 J_{e,i}) \quad (1.106)$$

où les paramètres énergétiques a et b_i sont définis de manière effective. Le terme cubique est responsable de la présence de termes non-diagonaux dans la base $\{|+1\rangle, |-1\rangle, |+2\rangle, |-2\rangle\}$, où nous obtenons [72] :

$$\hat{H}_{ech}^{cp} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_{cp} & \delta_1 & 0 & 0 \\ \delta_1 & \Delta_{cp} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_{cp} & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\Delta_{cp} \end{pmatrix} \quad (1.107)$$

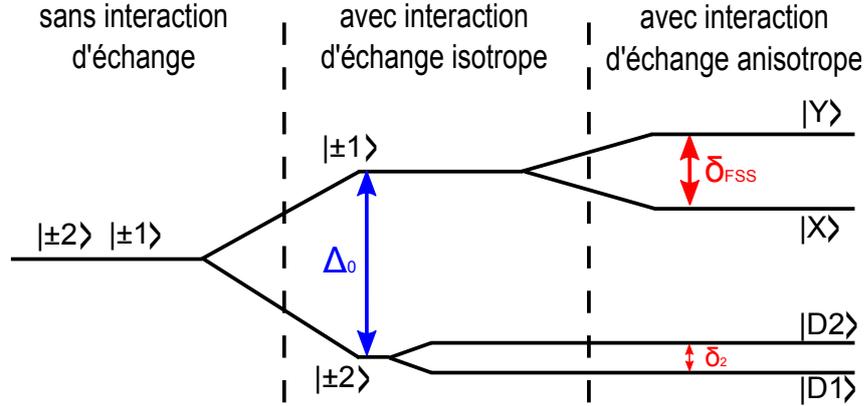


FIGURE 1.19 : États propres des paires électron-trous en fonction de la symétrie du potentiel de confinement d'une boîte quantique.

avec :

$$\begin{cases} \Delta_{cp} = -\frac{3}{4}(a + \frac{9}{4}b_z) \\ \delta_1 = \frac{3}{8}(b_x - b_y) \\ \delta_2 = \frac{3}{8}(b_x + b_y) \end{cases} \quad (1.108)$$

Dans le cas d'une boîte dont le potentiel de confinement présente une symétrie de révolution autour de son axe de croissance z , nous trouvons $\delta_1 = 0$ (car $b_x = b_y$ [72]), mais toujours $\delta_2 \neq 0$. Le hamiltonien d'échange total (courte portée et longue portée) prend donc la forme :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.109)$$

Les deux états brillants $|\pm 1\rangle$ sont donc dégénérés en énergie et états propres du système, tandis que la dégénérescence des états noirs est levée pour former les deux états propres :

$$\begin{cases} |D1\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+2\rangle - |-2\rangle) \\ |D2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+2\rangle + |-2\rangle) \end{cases} \quad (1.110)$$

Dans le cas d'un potentiel de confinement allongé selon une direction définie par l'angle θ en revanche, le terme δ_1 provenant de l'interaction courte portée s'ajoute au terme δ_{lp} issu de l'interaction longue portée et tous deux participent au splitting de structure fine δ_{FSS} . Notons cependant que $\delta_1, \delta_2 \ll \delta_{lp} \ll \Delta_0$. Ainsi, le hamiltonien d'échange total

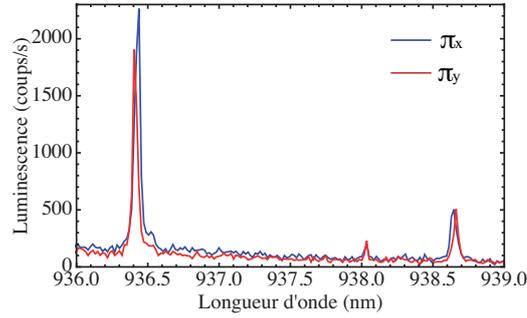


FIGURE 1.20 : Spectres de luminescence d'un état excitonique et de l'état biexcitonique associé. En rouge est représenté le spectre collecté en sortie d'un analyseur vertical (selon y) et en bleu horizontal (selon x).

s'écrit :

$$\hat{H}_{coul}^{ech} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \Delta_0 & \delta_{FSS} e^{-2i\theta} & 0 & 0 \\ \delta_{FSS} e^{2i\theta} & \Delta_0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\Delta_0 & \delta_2 \\ 0 & 0 & \delta_2 & -\Delta_0 \end{pmatrix} \quad (1.111)$$

La levée de dégénérescence des états propres brillants et noirs en fonction de la symétrie du système est illustrée sur la figure (1.19).

Signalons que l'interaction d'échange n'a pas d'effet ni sur l'exciton chargé (trion) [72], ni sur le biexciton [84]. Pour le premier, l'émission lors de la recombinaison est en effet polarisée circulairement, tandis que pour le second, comme représenté sur la figure (1.18), nous retrouvons les deux raies excitoniques polarisées linéairement Π_X et Π_Y , mais cette fois séparées en énergie de $-\delta_{FSS}$. Ainsi, sur la figure (1.20), nous attribuons le pic de luminescence centré en 936.4 nm à l'émission de l'exciton, tandis que celui centré en 938.7 nm correspond au biexciton associé, d'énergie de liaison de 3.2 meV . Il est en général assez compliqué, en raison de la densité de boîtes de notre échantillon, de distinguer l'émission de l'exciton et du biexciton d'une même boîte quantique. La raie biexcitonique doit normalement se situer à une énergie inférieure d'environ 3 meV [85] (énergie de liaison du biexciton) à celle de l'exciton et présenter un splitting de structure fine inversé par rapport à ce dernier.

1.5.5 Mise en évidence expérimentale

Comme nous le verrons par la suite, la résolution spectrale de notre dispositif expérimental étant d'environ 0.3 \AA (45 \mu eV), il nous est impossible de résoudre la structure fine de la transition excitonique neutre fondamentale pour près de 75% des boîtes quantiques étudiées. Afin de contourner ce problème, nous avons employé un interféromètre de

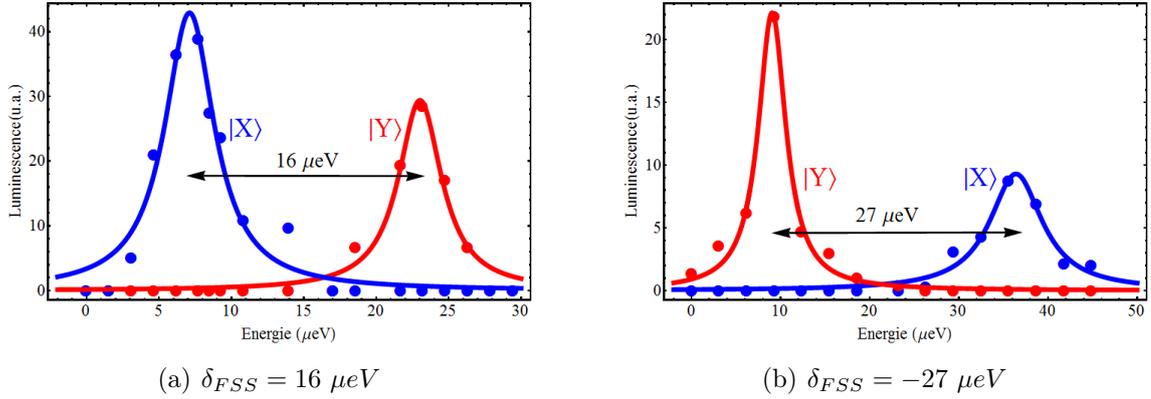


FIGURE 1.21 : Structure fine de deux boîtes quantiques, résolue au moyen de l'interféromètre de Fabry Péro, sous excitation non-résonnante. En rouge est représentée la luminescence en sortie d'un analyseur vertical (selon y) et en bleu celle issue d'un analyseur horizontal (selon x).

Fabry-Pérot (présenté dans le chapitre suivant), utilisé comme filtre interférentiel et nous permettant, en "balayant" la raie de luminescence de la transition fondamentale d'une boîte, d'obtenir une résolution d'environ $0.3 \mu eV$. Nous sommes alors capable de mesurer l'intégralité des splittings de structure fine et nous trouvons, des valeurs allant de $15 \mu eV$ à $225 \mu eV$ (en valeur absolue).

La figure (1.21) montre la micro-photoluminescence, analysée en polarisation, de deux boîtes quantiques excitées au niveau de la couche de mouillage. La structure fine excitonique est résolue au moyen de l'interféromètre de Fabry-Pérot, nous permettant par exemple de déterminer pour les deux boîtes considérées ici un splitting d'échange anisotrope de $\delta_{FSS} = E_Y - E_X = 16 \mu eV$ pour la première et $\delta_{FSS} = E_Y - E_X = -27 \mu eV$ pour la seconde. Notons que l'intensité des deux états de structure fine n'est pas la même et si nous regardons les diagrammes polaires correspondants représentés dans la figure (1.22), nous voyons que les deux états propres ne sont pas dirigés selon les directions cristallographiques ($[110]$ correspond à l'horizontale x et $[\bar{1}\bar{1}0]$ à la verticale y) et ne sont pas perpendiculaires entre eux. Ces différents points seront étudiés en détail dans le cinquième chapitre de ce manuscrit.

Au cours de ces expériences, qui ont été réalisées en excitant le système hors résonance (au niveau de la couche de mouillage, soit une énergie de $1.43 eV$), nous n'avons observé aucune corrélation entre l'énergie de recombinaison de l'exciton neutre fondamental et celle séparant les deux états de structure fine (δ_{FSS}). Cela est en contradiction avec les prévisions théoriques et les observations expérimentales faites par plusieurs groupes [78, 86, 87, 88, 89, 90], qui prévoient une relation entre le splitting de structure fine δ_{FSS}

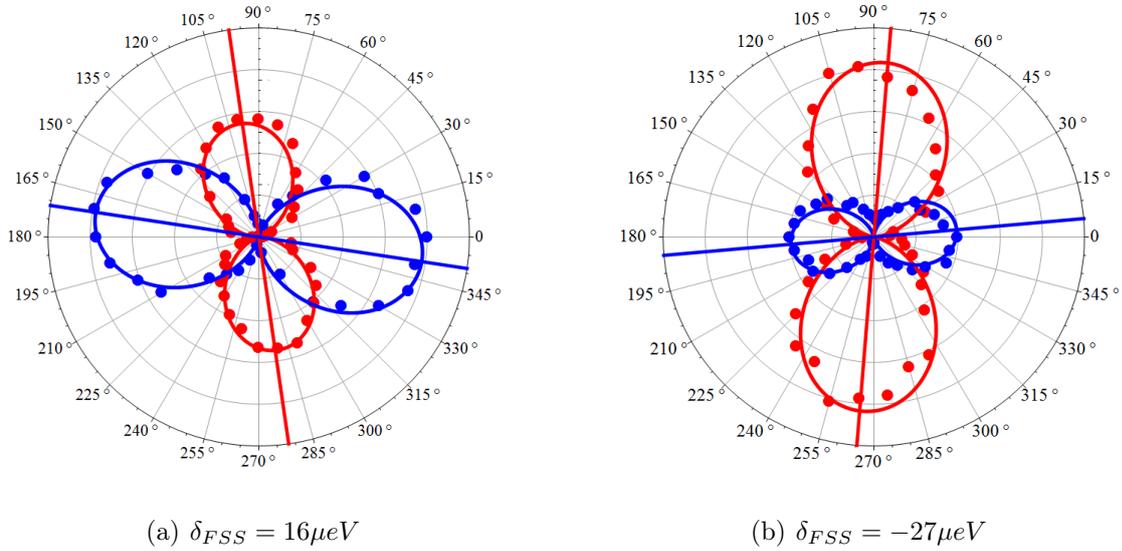


FIGURE 1.22 : Diagrammes polaires des états propres d'une boîte quantique sous excitation non résonnante.

et l'énergie d'émission des boîtes. En effet, celle-ci dépendant des dimensions du potentiel de confinement dans les trois directions de l'espace et des contraintes, tout comme la valeur du splitting d'échange anisotrope, les deux devraient être reliés entre eux. La théorie prévoit alors une valeur de splitting qui diminue avec l'énergie d'émission des boîtes [78, 89], jusqu'à s'annuler, puis devenir négative en augmentant en valeur absolue. Il a en réalité été mis en évidence [91, 92] que dans le cas de boîtes quantiques de symétrie réduite, un anticroisement des états propres se produit, la valeur du splitting ne s'annulant donc jamais, mais diminuant jusqu'à une valeur critique avant d'augmenter. Sur notre domaine d'étude s'étendant de 890 nm à 960 nm , nous n'avons cependant remarqué aucun comportement de ce type et la valeur absolue du splitting, tout comme son signe prennent toutes les valeurs possibles, quelle que soit l'énergie d'émission des boîtes considérées. Notre opinion est que l'énergie d'émission des boîtes étudiées ne dépend pas uniquement du confinement dans le plan (xy) et la relation qui pourrait exister entre cette énergie et la valeur du splitting est différente pour chaque boîte, les deux paramètres n'étant pas reliés entre eux de façon simple. En outre, les calculs théoriques réalisés ne prennent en général en compte que la modification d'une des dimensions de confinement, or si dans la réalité plusieurs paramètres changent d'une boîte à l'autre, il devient difficile de prévoir la relation entre l'énergie d'émission et la valeur du splitting de structure fine.

Bien que n'ayant pas réalisé une étude systématique au moyen de l'interféromètre de Fabry-Pérot de toutes les boîtes quantiques émettant entre 890 nm et 960 nm , nous avons

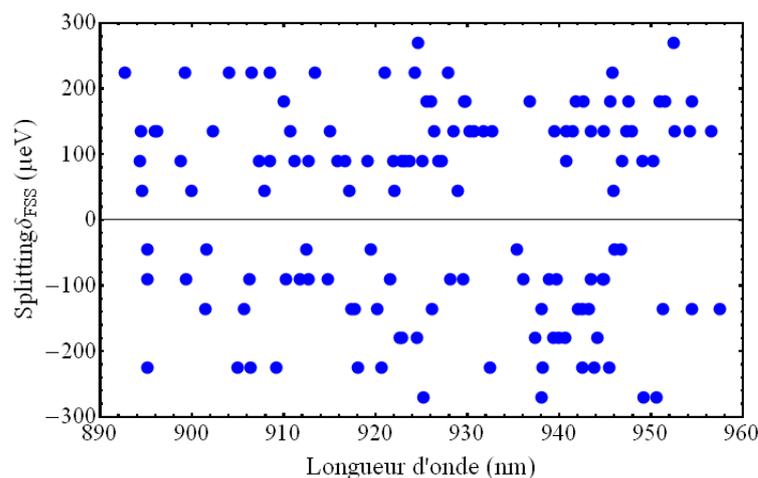


FIGURE 1.23 : *Splitting de structure fine de l'exciton neutre en fonction de la longueur d'onde de sa transition.*

avons cependant pu constater que la proportion de splittings résolus par notre dispositif expérimental, sans l'utilisation de l'interféromètre de Fabry-Pérot, est la même quelle que soit la longueur d'onde considérée, ce qui indique bien l'absence de diminution de δ_{FSS} en fonction de l'énergie d'émission. De plus, en représentant sur la figure (1.23) la valeur du splitting d'échange, résolu sans interféromètre de Fabry-Pérot, en fonction de la longueur d'onde de la transition, pour une centaine de boîtes réparties uniformément entre 890 nm et 960 nm , nous voyons qu'aucune tendance ne semble se dessiner.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous venons de présenter le système que nous étudierons tout au long de cette thèse, à savoir des boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs. Nous avons vu qu'en raison du confinement des porteurs de charge dans les trois directions de l'espace, l'énergie de ceux-ci est quantifiée, ce qui confère au système des propriétés particulières qui seront approfondies au troisième chapitre, lorsque nous présenterons l'interaction d'un système à deux niveaux avec un rayonnement. Nous avons par ailleurs déterminé la structure de bande des semi-conducteurs, dans le cadre de la théorie $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$ et nous sommes intéressés aux transitions optiques permises lorsque le système considéré est soumis à une excitation électromagnétique, ainsi qu'à celles de sa luminescence. Nous avons ainsi pu distinguer les transitions intra-bandes que nous ne considérerons plus par la suite des transitions inter-bande qui nous intéressent, en particulier la transition fondamentale d'un électron du dernier niveau de valence vers le premier niveau de conduction.

Nous avons également introduit le concept d'exciton, quasi-particule formée d'un élec-

tron de conduction et d'un trou dans la bande de valence liés entre eux par interaction coulombienne, tout en précisant que dans les boîtes quantiques que nous étudions, le potentiel de confinement étant plus important que le potentiel coulombien, il est le principal responsable de la liaison de l'électron et du trou et nous ne pouvons plus alors rigoureusement parler d'exciton, mais seulement de paire électron-trou. La recombinaison d'un exciton peut, en fonction du spin des particules, résulter en deux transitions radiatives dites brillantes pour lesquelles la projection du moment cinétique total vaut $m_J = \pm 1$ ou en deux transitions non radiatives dites noires correspondants à $m_J = \pm 2$. Les transitions qui nous concerneront par la suite sont celle que nous pouvons observer expérimentalement, à savoir les transitions $m_J = \pm 1$ qui sont généralement couplées entre elles par l'interaction coulombienne d'échange qui lève la dégénérescence des états brillants pour créer deux nouveaux états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, combinaisons linéaires des états $|\pm 1\rangle$, séparés par une énergie de structure fine que nous avons mesurée entre $\delta_{FSS} = 15 \mu eV$ et $\delta_{FSS} = 225 \mu eV$. L'étude de la structure fine excitonique nous a menés à constater que ces états propres que nous supposions perpendiculaires entre eux, dirigés selon les directions cristallographiques et ayant une intensité d'émission comparable ont en réalité des propriétés bien différentes, ce qui a motivé leur étude approfondie qui sera présentée au cinquième chapitre de ce manuscrit.

Chapitre 2

Montage expérimental

Sommaire

2.1	Optique guidée	58
2.1.1	Principe	59
2.1.2	Guides d'onde dans nos échantillons	64
2.2	Dispositif expérimental	73
2.2.1	Schéma général	73
2.2.2	Dispositif d'excitation	75
2.2.3	Ligne à retard	77
2.2.4	Dispositif de détection	83
2.2.5	Interféromètre de Fabry-Pérot	86
2.2.6	Cryostat	92
2.2.7	Dispositif Hanbury Brown et Twiss	94

Ce second chapitre sera consacré au dispositif expérimental mis en œuvre pour réaliser l'étude des propriétés électroniques de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs. Dans un premier temps, nous verrons les structures spécifiques réalisées sur nos échantillons dans le but de découpler spatialement les directions d'excitation et de détection, afin de pouvoir exciter les boîtes de manière résonnante avec la transition étudiée. Nous verrons ensuite comment est conçu notre montage expérimental pour tirer partie de cette géométrie originale. Pour ce faire, nous commencerons par considérer un schéma général du montage, avant de traiter plus en détail tout d'abord le dispositif permettant l'excitation de ces boîtes quantiques, puis celui par lequel est réalisée la détection de leur luminescence. Nous considérerons également le cryostat nous permettant de réaliser nos expériences de manière stable à basse température, paramètre crucial pour la réalisation de nos expériences.

2.1 Optique guidée

Une des propriétés les plus intéressantes d'un système à deux niveaux est la possibilité de pouvoir créer une superposition cohérente de ses deux états propres. Pour ce faire, l'excitation de celui-ci doit être résonnante avec la transition entre ses deux niveaux, il est alors impossible dans une configuration normale de distinguer sur un spectre la raie d'émission du système de celle du laser d'excitation. Plusieurs techniques expérimentales ont ainsi été mises en place pour détecter le signal issu d'une boîte quantique unique sous excitation résonnante, comme par exemple des mesures dites "pompe-sonde" [93], des mesures en transmission [94] ou des mesures de photo-courant pour des boîtes insérées dans des jonctions PIN [95]. Une autre alternative, permettant elle d'accéder à la luminescence des boîtes, consiste en une excitation "quasi-résonnante" [96, 97], permettant de séparer spectralement la raie d'émission du laser d'excitation en décalant celui-ci d'une quantité strictement égale à l'énergie d'un phonon LO par rapport à la transition étudiée.

La première observation d'un spectre de luminescence d'une boîte quantique unique sous excitation strictement résonnante a été réalisée en 2007 par Muller et al. [98] pour des boîtes quantiques insérées dans une microcavité. Cette configuration, reprise depuis par d'autres groupes [99, 100], permet de découpler spatialement les directions d'excitation et de détection, en guidant le laser incident dans le plan des boîtes et en collectant la luminescence de celles-ci dans la direction perpendiculaire. C'est sur une idée de ce type que repose la géométrie de nos échantillons, dans lesquels les boîtes quantiques sont insérées dans des guides d'onde uni-dimensionnels [101]. Ainsi, Romain Melet a dès 2004 consacré sa thèse [18] à l'étude de défauts d'interface dans des fils quantiques de GaAs/GaAlAs. Ces

fil servant de guide d'onde, il a dès lors pu sonder à la résonance les défauts d'interface, qui, confinant les électrons dans les trois directions de l'espace, forment des boîtes quantiques [101, 102].

2.1.1 Principe

Il est possible de guider une onde électromagnétique dans un milieu d'indice de réfraction n_2 en insérant celui-ci entre deux couches d'un matériau d'indice de réfraction $n_1 < n_2$. La différence d'indice entre les deux milieux permettant en effet de confiner l'onde dans le milieu de plus fort indice, qui constitue le "cœur" du guide d'onde, tandis que le milieu de plus faible indice dans lequel l'onde devient évanescente permet de confiner celle-ci, et forme ainsi la "gaine" du guide, comme cela est schématisé dans la figure (2.1).

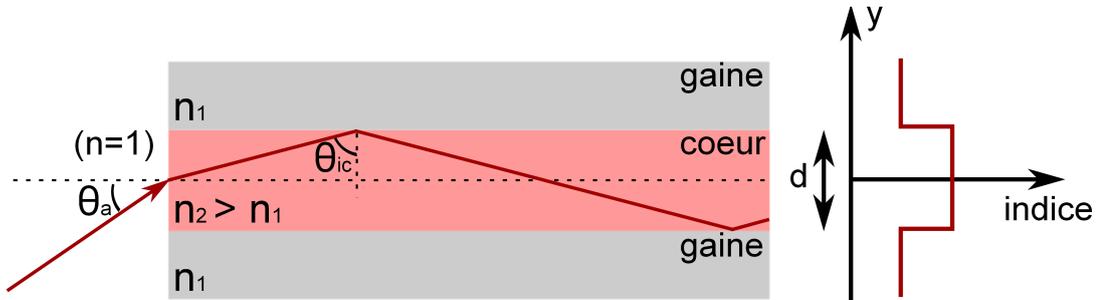


FIGURE 2.1 : Principe de la réalisation d'un guide d'onde. Le rayon lumineux représenté illustre le rayon critique nécessaire pour qu'il y ait réflexion totale dans le cœur du guide.

Commençons par appréhender simplement le problème en nous plaçant dans le cadre de l'optique géométrique, valable tant que l'épaisseur d du guide d'onde est grande devant la longueur d'onde λ de l'onde électromagnétique. Considérons un rayon lumineux se propageant dans le cœur du guide et atteignant l'interface plane cœur-gaine avec un angle d'incidence θ_i par rapport à la normale à l'interface. Une partie de la lumière incidente est transmise dans une direction définie par l'angle θ_t , tandis qu'une autre partie est réfléchie selon une direction définie par l'angle θ_r . Les lois de Snell-Descartes donnent alors les relations :

$$\begin{cases} \theta_r = \theta_i \\ n_2 \sin \theta_i = n_1 \sin \theta_t \end{cases} \quad (2.1)$$

Pour que le rayon lumineux soit totalement réfléchi, il est nécessaire que $\theta_t > \pi/2$. Comme ici $n_2 > n_1$, c'est à dire $\theta_t > \theta_i$, il y a réflexion totale du rayon incident lorsque $\theta_i > \theta_{ic}$ avec $\sin \theta_{ic} = n_1/n_2$. Par ailleurs, pour avoir $\theta_i = \theta_{ic}$ à l'interface cœur-gaine, il faut que le rayon incident arrive sur le dioptre air-cœur avec un angle d'incidence $\theta'_i < \theta_a$ (angle

d'acceptance), tel que (toujours en utilisant les lois de Snell-Descartes) :

$$n_{air} \sin \theta_a = \sin \theta_a = n_2 \sin(\pi/2 - \theta_{ic}) = n_2 \cos \theta_{ic} = n_2 \sqrt{1 - \sin^2 \theta_{ic}} = n_2 \sqrt{1 - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2} \quad (2.2)$$

soit :

$$\sin \theta_a = \sqrt{n_2^2 - n_1^2} = ON \quad (2.3)$$

Cette quantité $\sin \theta_a$ est appelée "ouverture numérique" (ON) du guide d'onde. Pour un guide dont le cœur est constitué de GaAs d'indice de réfraction $n_2 = 3.63$ et la gaine de GaAl_{0,6}As d'indice de réfraction $n_1 = 3.4$, nous trouvons $ON = 0.48$, soit $\theta_a \approx 30^\circ$.

Modes de propagation d'une onde dans un guide d'onde diélectrique plan

Approchons maintenant le problème d'un point de vue électromagnétique. Une onde plane progressive monochromatique se propageant dans le cœur du guide avec un vecteur d'onde \mathbf{k} , tel que $k = k_2 = n_2 k_0 = n_2 2\pi/\lambda_0$ où λ_0 est la longueur d'onde dans le vide, arrive à l'interface cœur-gaine en $y = 0$ avec un angle d'incidence θ , comme schématisé sur la figure (2.2). Les ondes réfléchies et transmises sont planes, de vecteur d'onde respectif

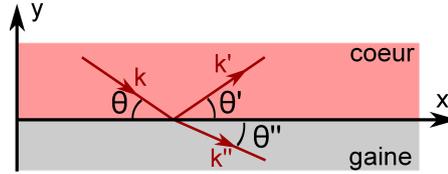


FIGURE 2.2 : Onde incidente sur le dioptré cœur-gaine.

\mathbf{k}' et \mathbf{k}'' , avec $k' = k_2 = n_2 k_0$ et $k'' = k_1 = n_1 k_0$. En représentation complexe, les champs électriques correspondant à ces trois ondes peuvent s'écrire sous la forme $\mathcal{E}_i e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$, $\mathcal{E}_r e^{i(\omega t - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})}$ et $\mathcal{E}_t e^{i(\omega t - \mathbf{k}'' \cdot \mathbf{r})}$. La continuité de la composante tangentielle du champ électrique en $y = 0$ s'écrit alors :

$$\mathcal{E}_i^\parallel e^{-i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + \mathcal{E}_r^\parallel e^{-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}} = \mathcal{E}_t^\parallel e^{-i\mathbf{k}'' \cdot \mathbf{r}} \quad (2.4)$$

où $\mathbf{r} = x\mathbf{u}_x + y\mathbf{u}_y + z\mathbf{u}_z$. Nous trouvons ainsi $k_x = k'_x = k''_x$ et $k_z = k'_z = k''_z = 0$ donc :

$$\begin{cases} \theta' = \theta \\ k_2 \cos \theta = k_1 \cos \theta'' \end{cases} \quad (2.5)$$

Les trois vecteurs d'onde ont donc pour expression :

$$\begin{cases} \mathbf{k} = k_2 \cos \theta \mathbf{u}_x - k_2 \sin \theta \mathbf{u}_y \\ \mathbf{k}' = k_2 \cos \theta \mathbf{u}_x + k_2 \sin \theta \mathbf{u}_y \\ \mathbf{k}'' = k_2 \cos \theta \mathbf{u}_x - \sqrt{k_1^2 - k_2^2 \cos^2 \theta} \mathbf{u}_y \end{cases} \quad (2.6)$$

Pour $\theta < \theta_c = \pi/2 - \theta_{ic} = \arccos(n_1/n_2)$, où θ_c est le complémentaire de l'angle critique θ_{ic} défini précédemment, nous sommes en situation de réflexion totale, car $k_2 \cos \theta > k_1$ et de fait la composante selon y de \mathbf{k}'' ($k_y'' = -\sqrt{k_1^2 - k_2^2 \cos^2 \theta}$) est imaginaire pure. Le vecteur d'onde dans la gaine ($y < 0$) peut ainsi se mettre sous la forme :

$$\mathbf{k}'' = k_2 \cos \theta \mathbf{u}_x + i k_2 \sqrt{\cos^2 \theta - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2} \mathbf{u}_y \quad (2.7)$$

et le champ électrique dans la gaine est alors donné par :

$$\mathcal{E}_t e^{i(\omega t - k_1 \cos \theta x)} e^{k_1 \eta(\theta) y} \quad \text{où} \quad \eta(\theta) = \sqrt{\cos^2 \theta - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2} \quad (2.8)$$

Nous obtenons donc dans la gaine du guide une onde se propageant dans la direction x , mais de caractère évanescent dans la direction y . Cette onde existe donc uniquement sur une épaisseur caractéristique $\delta(\theta) = 1/k_2 \eta(\theta)$, l'épaisseur de peau, dépendant de l'angle d'inclinaison θ de l'onde incidente sur le dioptre.

Intéressons nous au cas particulier d'une onde polarisée orthogonalement au plan d'incidence, c'est à dire pour laquelle : $\mathcal{E}_i(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_i(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}_z$, $\mathcal{E}_r(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_r(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}_z$ et $\mathcal{E}_t(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_t(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}_z$. La continuité de la composante tangentielle du champ électrique s'écrit alors :

$$\mathcal{E}_i(\mathbf{r}, t) + \mathcal{E}_r(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_t(\mathbf{r}, t) \quad (2.9)$$

Par ailleurs, en l'absence de charges libres (pas de courant de surface) sur le dioptre cœur-gaine, la composante tangentielle du champ magnétique ($\mathcal{B} = n\mathbf{k} \wedge \mathcal{E}/ck$) est elle aussi continue, soit :

$$-\frac{n_2}{c} \sin \theta \mathcal{E}_i(\mathbf{r}, t) + \frac{n_2}{c} \sin \theta \mathcal{E}_r(\mathbf{r}, t) = -\frac{n_1}{c} \sin \theta'' \mathcal{E}_t(\mathbf{r}, t) \quad (2.10)$$

d'où :

$$-\sin \theta \mathcal{E}_i + \sin \theta \mathcal{E}_r = i\eta(\theta) \mathcal{E}_t \quad (2.11)$$

Nous en déduisons les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface cœur-gaine :

$$\begin{cases} r = \frac{\mathcal{E}_r}{\mathcal{E}_i} = \frac{\sin \theta + i\eta(\theta)}{\sin \theta - i\eta(\theta)} \\ t = \frac{\mathcal{E}_t}{\mathcal{E}_i} = \frac{2 \sin \theta}{\sin \theta - i\eta(\theta)} \end{cases} \quad (2.12)$$

Nous avons donc bien en cas de réflexion totale $|r| = 1$ et le coefficient de réflexion peut se mettre sous la forme $r = |r|e^{i\phi_r}$ où ϕ_r est le déphasage à la réflexion, donné par :

$$\tan \frac{\phi_r}{2} = \frac{\eta(\theta)}{\sin \theta} = \frac{\sqrt{\cos^2 \theta - \left(\frac{n_1}{n_2}\right)^2}}{\sin \theta} = \frac{\sqrt{\cos^2 \theta - \cos^2 \theta_c}}{\sin \theta} = \frac{\sqrt{\sin^2 \theta_c - \sin^2 \theta}}{\sin \theta} \quad (2.13)$$

soit :

$$\tan \frac{\phi_r}{2} = \sqrt{\frac{\sin^2 \theta_c}{\sin^2 \theta} - 1} \quad (2.14)$$

c'est à dire que le déphasage ϕ_r varie de π lorsque $\theta = 0$ à 0 lorsque $\theta = \theta_c$.

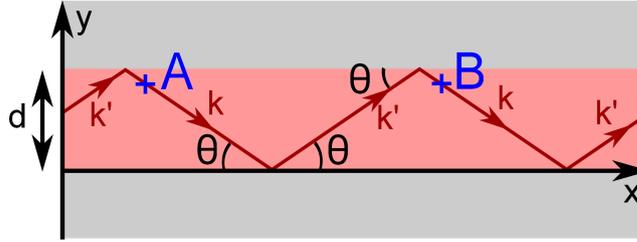


FIGURE 2.3 : Réflexions multiples dans un guide d'onde.

Considérons maintenant une onde plane transverse, toujours polarisée perpendiculairement au plan d'incidence, et subissant des réflexions multiples cohérentes à chaque interface cœur-gaine, comme illustré sur le schéma de la figure (2.3). Après deux réflexions totales, la troisième onde est identique à la première, si l'onde au point A est en phase avec l'onde au point B , c'est à dire si :

$$\phi_B - \phi_A = 2d k_2 \sin \theta - 2\phi_r = 2m\pi \quad \text{avec } m \text{ entier} \quad (2.15)$$

où d est l'épaisseur du cœur et ϕ_r le déphasage induit à chaque réflexion sur la gaine, défini par (2.14). En utilisant les équations (2.14) et (2.15), nous obtenons l'égalité :

$$\sqrt{\frac{\sin^2 \theta_c}{\sin^2 \theta_m} - 1} = \tan \left(\frac{\pi d}{\lambda_2} \sin \theta_m - m\pi \right) \quad (2.16)$$

et les angles θ_m solution de cette équation définissent les modes transverses électriques TE_m du guide. La résolution de cette équation peut se faire graphiquement, comme c'est le cas dans la figure (2.4), où nous avons tracé en rouge, $\sqrt{\frac{\sin^2 \theta_c}{\sin^2 \theta} - 1}$ en fonction de $(\sin \theta)$ et en noir, $\tan \left(\frac{\pi d}{\lambda_2} \sin \theta - m\pi \right)$ en fonction de $(\sin \theta)$. Les angles θ_m pour lesquels ces deux courbes s'intersectent sont solutions de (2.16) et l'indice m désigne l'ordre du mode. Notons que plus un mode est d'ordre élevé, plus le champ électrique oscille rapidement dans l'espace et plus il pénètre profondément dans la gaine. Les solutions de (2.16) sont au nombre de $[1 + PE(\sin \theta_c / (\lambda_2 / 2d)) = 1 + PE(2d(ON) / \lambda_0)]$, où $PE(a)$ désigne la partie entière de a , $(ON) = \sqrt{n_2^2 - n_1^2}$ est l'ouverture numérique du guide et λ_0 la longueur d'onde dans le vide.

Comme nous le constatons sur la figure (2.4), où nous avons résolu (2.16) pour deux épaisseurs de guide différentes, pour une épaisseur d suffisamment faible, de sorte que

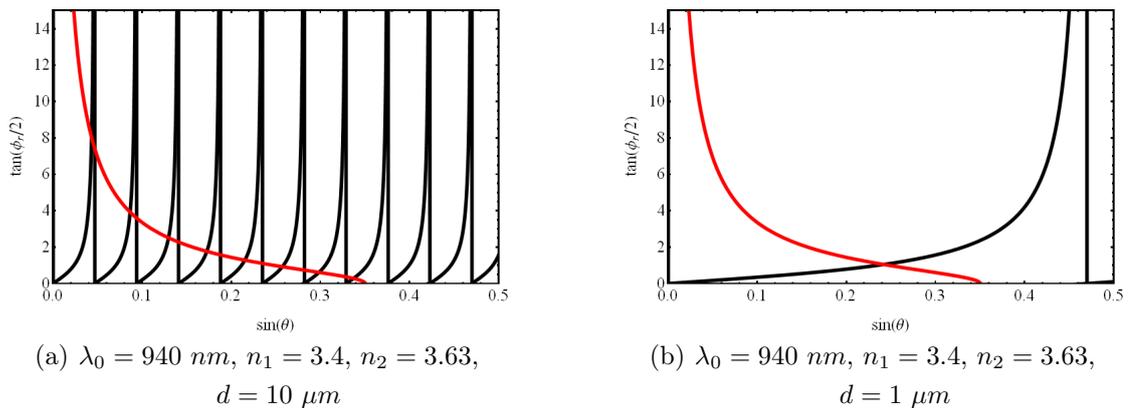


FIGURE 2.4 : Résolution graphique de (2.16).

$2d(ON) < \lambda_0$, un seul mode transverse électrique est permis (le mode $m = 0$) dans le guide, qui est alors qualifié de "monomode". Ainsi un guide constitué d'un cœur de GaAs et d'une gaine de GaAl_{0.6}As est monomode pour une onde de $\lambda_0 = 940 \text{ nm}$ lorsqu'il a une épaisseur de l'ordre du micromètre ou inférieure, comme en témoigne la figure (2.4.b).

Il est bien sûr possible de faire le même type de raisonnement pour un champ polarisé parallèlement au plan d'incidence, afin d'en déduire les modes transverse magnétiques $\text{TM}_{m'}$ du guide d'onde et les angles $\theta_{m'}$ correspondants ($\theta_{m'} > \theta_m$).

Modes de propagation d'une onde dans un guide d'onde diélectrique à section rectangulaire

Un guide d'onde plan est donc capable de confiner la lumière dans la direction transverse y , tandis que celle-ci se propage dans la direction x . Un tel confinement n'est cependant pas suffisant pour guider la lumière sur de grande distances, car celle-ci se propageant dans l'ensemble du plan, la densité d'énergie électromagnétique diminue rapidement à mesure que l'onde progresse dans la structure. Il est donc nécessaire de confiner la lumière suivant deux directions, ce qui est possible lorsque les dimensions du guide d'onde sont finies selon y , mais également selon z , comme illustré dans la figure (2.5).

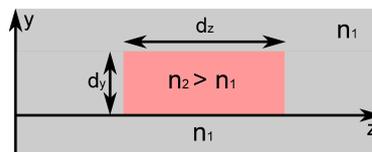


FIGURE 2.5 : Schéma d'un guide d'onde à section rectangulaire.

Dans une telle structure, l'analyse des modes est délicate et ne peut être réalisée de manière analytique, mais doit se faire numériquement. Notons seulement que les modes TE

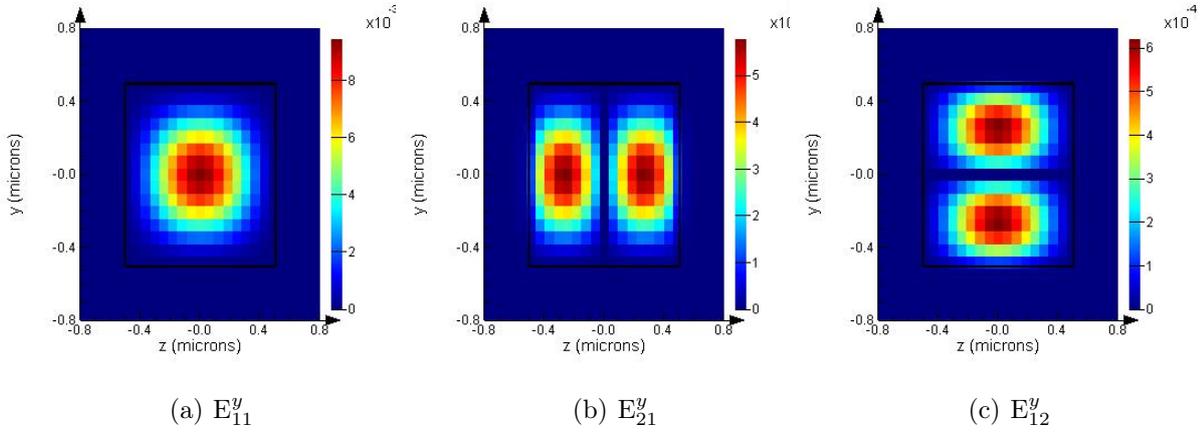


FIGURE 2.6 : Profils de la composante E^y du champ électrique pour les modes (a) E_{11}^y , (b) E_{21}^y et (c) E_{12}^y , dans le cas d'un guide d'onde de section carrée $d_y = d_z = 1 \mu\text{m}$, avec $n_1 = 3.4$, $n_2 = 3.63$.

et TM n'existent plus dans ce type de structure et que les modes de propagation guidée pour le champ électrique sont alors désignés par E_{pq}^y et E_{pq}^z , suivant que le champ électrique s'aligne suivant y ou z à la limite de faible guidage ($n_2 - n_1 \rightarrow 0$, p et q désignant le nombre d'extrema du champ, respectivement selon z et y). Ainsi, la figure (2.6), obtenue au moyen du logiciel "Lumerical", montre le carré du champ électrique E^y , obtenu numériquement, dans un guide d'onde de section carrée $d_y = d_z = 1 \mu\text{m}$, avec $n_1 = 3.4$, $n_2 = 3.63$ pour le mode fondamental E_{11}^y et les modes E_{21}^y et E_{12}^y .

2.1.2 Guides d'onde dans nos échantillons

L'hétéro-structure d'InAs/GaAs que nous étudions est composée d'une couche de GaAs sur laquelle est effectuée la croissance de la couche de mouillage et des boîtes quantiques d'InAs, sur lesquelles est ensuite déposée une dernière couche de GaAs, de même épaisseur que la première. L'ensemble de ces trois couches dont l'épaisseur totale représente $0.6 \mu\text{m}$ peut alors être insérée entre deux couches de $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$ de $1 \mu\text{m}$ d'épaisseur chacune. L'indice de réfraction du GaAs étant de 3.61 [103] (à température ambiante, à 885 nm), celui-ci est donc supérieur à celui du $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$ valant 3.23 [104, 105] (à température ambiante, à 885 nm), et la lumière peut être guidée dans l'hétéro-structure d'InAs/GaAs qui forme donc le cœur du guide d'onde. Les deux couches de $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$ qui permettent de confiner la lumière forment quant à elles la gaine du guide. L'ensemble de cette structure est schématisée dans la figure (2.7).

Le guide d'onde bidimensionnel ainsi réalisé permet de confiner la lumière dans le plan des boîtes. Cependant dans une telle géométrie, la densité d'énergie électromagnétique diminue rapidement à mesure que la lumière se propage dans le guide d'onde, car celle-ci se trouve dispersée dans le plan du guide. Afin d'être capable de travailler loin de la facette

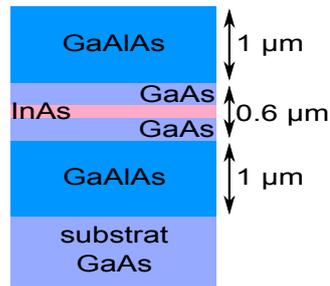


FIGURE 2.7 : Schéma de la structure permettant de confiner la lumière dans le plan des boîtes.

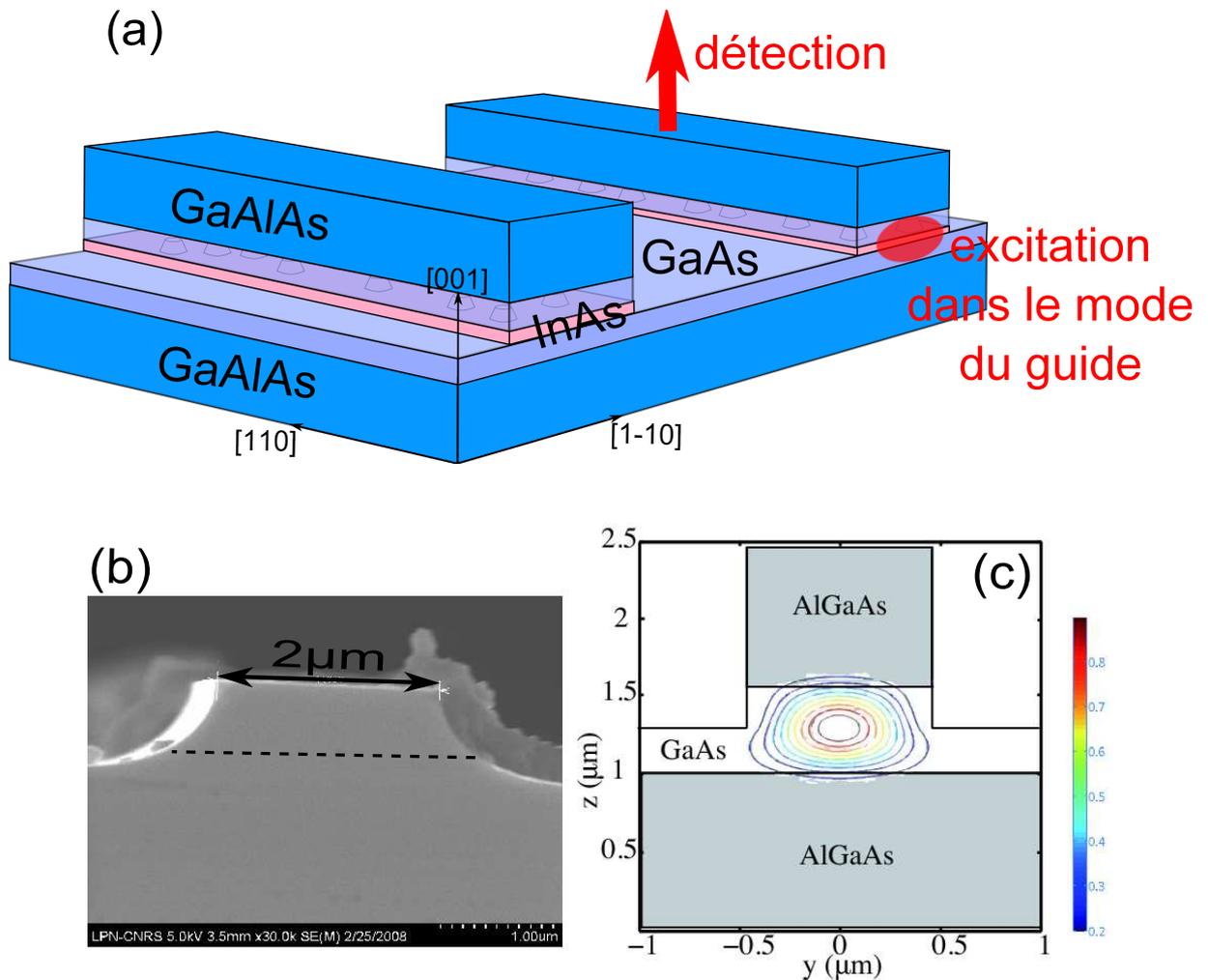


FIGURE 2.8 : (a) Schéma d'une hétérostructure d'InAs/GaAs, formant le cœur du guide, insérée entre deux couches de $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$, formant la gaine du guide. (b) Image TEM de la coupe transversale d'un guide d'onde d'une première génération d'échantillons, les pointillés représentent le plan des boîtes. (c) Profil d'intensité du mode fondamental du guide d'onde.

d'entrée d'un guide, pour pouvoir s'affranchir de la lumière parasite qui y est diffusée, et également pour être capable d'étudier des boîtes sur toute la longueur de l'échantillon, il faut donc confiner la lumière dans une direction supplémentaire. Cela est réalisé en supprimant, par gravure chimique, une partie de la couche supérieure de $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$. Au cours de cette procédure, réalisée au LPN après la croissance de l'échantillon, un masque formant plusieurs séries de quatre rubans, d'une largeur de $0.5\ \mu\text{m}$, $1\ \mu\text{m}$, $1.5\ \mu\text{m}$ et $2\ \mu\text{m}$, séparés les uns des autres de $50\ \mu\text{m}$, est appliqué sur l'échantillon. Un traitement chimique sélectif permet alors, autour de ces rubans, de supprimer les couches supérieures de GaAlAs et de GaAs , ainsi que la couche d' InAs (couche de mouillage et boîtes quantiques), ne laissant intactes, entre les guides, que les couches inférieures de GaAs et GaAlAs . Sur la figure (2.8.a) sont schématisés deux guides d'onde uni-dimensionnels ainsi réalisés. La suppression de la couche de mouillage et des boîtes quantiques d' InAs entre les guides permet de limiter les boîtes étudiées à celles contenues dans les guides d'onde.

La figure (2.8.b) montre une image réalisée par microscopie électronique en transmission (TEM), de la coupe transverse d'un guide d'onde de $2\ \mu\text{m}$ de large, sur laquelle nous constatons la présence d'interfaces latérales non abruptes. La figure (2.8.c) montre une simulation numérique du profil d'intensité du mode guidé correspondant à un guide idéal, aux interfaces nettes. En raison du grand saut d'indice entre l'hétérostructure et l'air, ces guides d'onde permettent de confiner la lumière latéralement, créant ainsi un mode optique guidé unidimensionnel situé sous le ruban supérieur de $\text{GaAl}_{0.6}\text{As}$. Signalons pour finir que dans cette structure unidimensionnelle, la densité d'énergie électromagnétique reste quasiment constante tout le long du guide d'onde, tant que l'énergie de l'excitation est inférieure à l'énergie d'absorption des matériaux qui le constituent. Ainsi, pour une énergie inférieure à $1.34\ \text{eV}$, la lumière est dans la zone dite de "transparence" du guide d'onde et il nous est possible, comme illustré sur la figure (2.9.d), de voir à l'extrémité du guide la lumière transmise.

Sur la figure (2.9) sont exposées quatre images de la surface de l'échantillon, obtenues au moyen d'une camera CCD de type webcam, reliée à un ordinateur. La première image montre un guide d'onde éclairé par de la lumière blanche, envoyée sur l'échantillon selon un dispositif qui sera détaillé dans la suite de ce chapitre. Remarquons que ce guide est incliné de 7° par rapport à l'horizontale, afin de limiter les réflexions aux interfaces guide/air, comme nous le démontrerons par la suite. La seconde image montre le même guide, sans lumière blanche mais auquel a été couplé un laser d'énergie $1.42\ \text{eV}$. À cette énergie le laser est absorbé par la couche de mouillage, et la luminescence alors émise est visible sur la figure (2.9.b). L'observation de cette luminescence sur toute la longueur du guide permet de vérifier que le couplage est bien réalisé et d'optimiser les réglages à l'entrée du guide

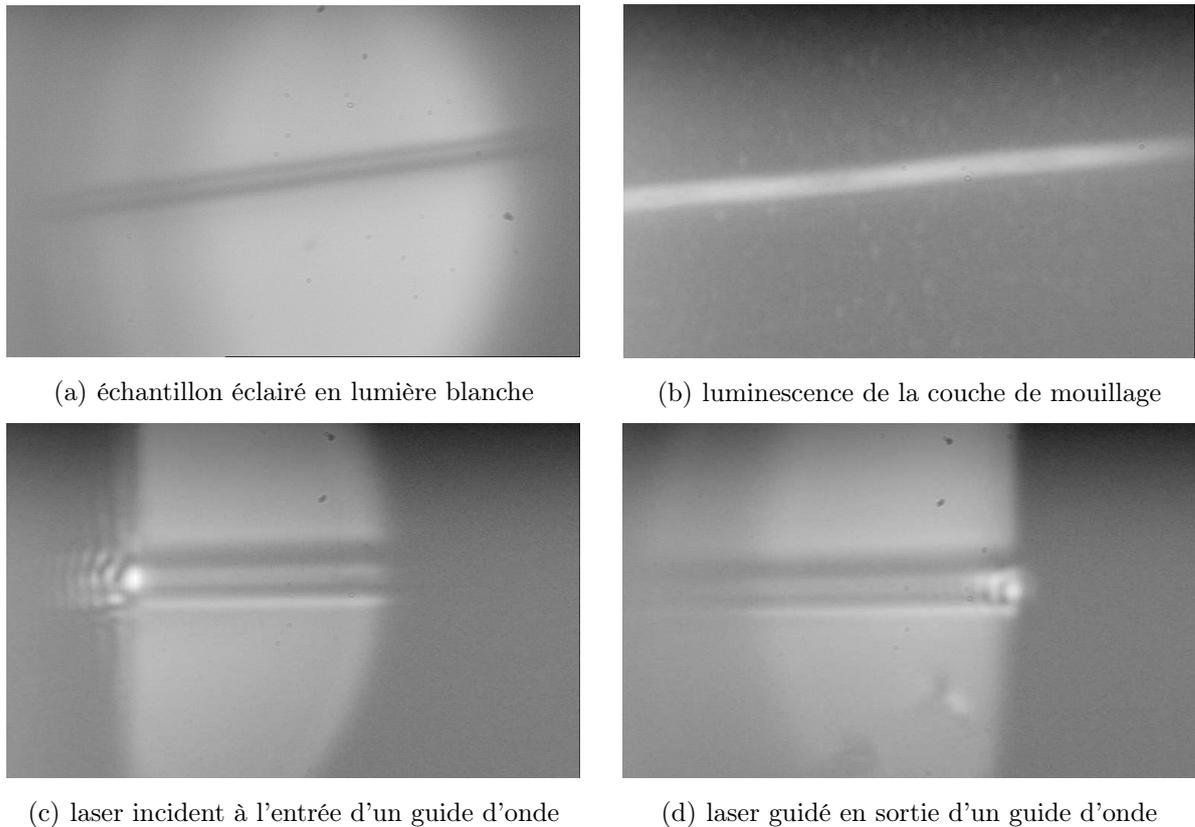


FIGURE 2.9 : *Images de la surface de l'échantillon. (a) Un guide d'onde de l'échantillon est éclairé par une lampe blanche. (b) Le laser de longueur d'onde $\lambda = 867\text{nm}$ est couplé à un guide d'onde et nous voyons la luminescence de la couche de mouillage ainsi excitée. (c) Le laser de longueur d'onde $\lambda = 920\text{nm}$ est couplé à un guide d'onde et nous voyons (d) le laser transmis en sortie du guide.*

(focalisation, positionnement latéral et en hauteur de l'objectif servant à l'excitation). Finalement, les deux dernières images montrent la surface de l'échantillon, éclairée en lumière blanche, au niveau de l'entrée et de la sortie du guide. Sur l'image (2.9.c), nous voyons comment le laser d'énergie 1.34 eV est focalisé à l'entrée du guide, et sur (2.9.d) comment, dans la zone de transparence, celui-ci est guidé jusqu'à la sortie du guide d'onde.

Inclinaison des guides d'onde

Comme cela apparaît clairement sur les figures (2.9.a) et (2.9.b), une partie des guides d'onde utilisés sont inclinés d'un angle de 7° par rapport à l'horizontale (direction [110]). La raison de ce choix est la volonté de réduire l'onde réfléchi à l'interface semi-conducteur/air, que nous jugeons responsable de certains résultats expérimentaux "étranges" observés, en particulier sur certaines courbes d'oscillations de Rabi où l'intensité augmentait avec la puis-

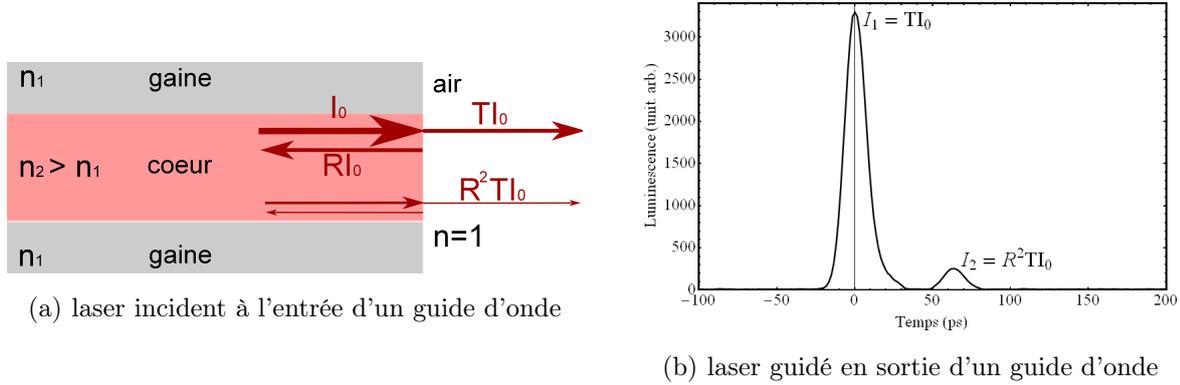


FIGURE 2.10 : *Intensité lumineuse en sortie du guide d'onde excitée par une seule impulsion laser.*

sance d'excitation.

Afin de déterminer l'importance de la réflexion causée par la différence d'indice de réfraction entre le GaAs et l'air, nous avons réalisé à l'aide d'une caméra à balayage de fentes (streak camera), d'une résolution temporelle de 4 ps , des expériences en transmission en récoltant le laser issu de la sortie du guide d'onde, lorsqu'une seule impulsion lumineuse est couplée à l'entrée de celui-ci. Comme le montre la figure (2.10), l'intensité lumineuse détectée en sortie du guide en fonction du temps présente deux pics d'intensité différente I_1 et I_2 et distants temporellement de $\delta t = 63 \text{ ps}$. En effet, lorsque la lumière après avoir traversé le guide arrive à l'interface échantillon/air, la différence d'indice optique entre les deux milieux engendre une transmission et une réflexion partielle de la lumière. Le premier pic d'intensité $I_1 = TI_0$, correspond à l'intensité de l'onde transmise lors de son premier passage au niveau du dioptre GaAs/air, tandis que le second d'intensité $I_2 = R^2 TI_0$ correspond à l'onde réfléchie une première fois en sortie du guide, puis une seconde fois à l'entrée du guide et finalement transmise lorsque l'onde s'étant propagée arrive de nouveau sur la facette de sortie du guide.

En comparant l'intensité des deux raies ainsi obtenues, nous sommes capables d'évaluer le coefficient de réflexion à l'interface GaAs/air :

$$R^2 = \sqrt{\frac{I_2}{I_1}} = \sqrt{\frac{252}{3274}} \approx 28\% \quad \Rightarrow \quad r = \sqrt{R} \approx 53\% \quad (2.17)$$

ce qui correspond bien à la valeur théorique :

$$R^2 = \left(\frac{n_2 - n_{air}}{n_2 + n_{air}} \right)^2 = \left(\frac{3.63 - 1}{3.63 + 1} \right)^2 \approx 32\% \quad \Rightarrow \quad r = \sqrt{R} \approx 57\% \quad (2.18)$$

De même, la durée δt écoulée entre la détection du premier pic et celle du second nous permet de déterminer la distance parcourue par la partie de l'impulsion ayant effectué un

aller-retour supplémentaire avant d'être transmise :

$$2L = \frac{\delta t c}{n_2^{eff}} = 5.2 \text{ mm} \quad (2.19)$$

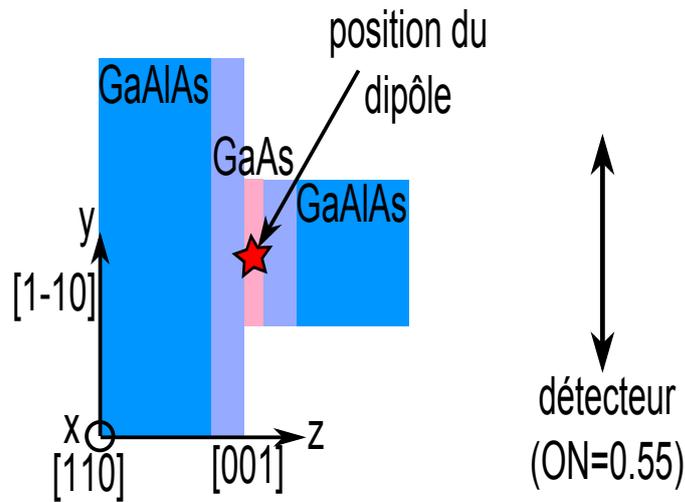
où n_2^{eff} est l'indice effectif. Nous trouvons donc une distance est tout-à-fait compatible avec un aller-retour dans un guide d'onde d'approximativement 2.5 mm de longueur, confirmant bien l'origine des deux pics observés sur la figure (2.10).

Les mêmes mesures effectuées sur un guide incliné de 7° par rapport à la direction cristallographique $[110]$ montrent quant elles une absence totale de second pic, indiquant que l'onde réfléchi sur le dioptre GaAs/air ne se propage pas ou peu dans le guide d'onde, ne venant pas réexciter le système étudié.

Cependant, en dépit de l'absence d'onde réfléchi dans ces guides d'onde inclinés, les résultats expérimentaux obtenus pour ce type de guide sont identiques à ceux obtenus pour des guides orientés selon $[110]$. La réflexion supplémentaire de l'onde ne semble donc pas avoir d'influence sur le comportement du système à deux niveaux étudié, même si dans le doute il nous a semblé toujours préférable d'utiliser les guides inclinés pour nous affranchir des réflexions parasites aux interfaces.

Extraction de la luminescence

Dans notre géométrie, le laser d'excitation est confiné dans le plan des boîtes, dont la luminescence est détectée dans la direction perpendiculaire. Il est donc nécessaire de vérifier numériquement que la présence de guides d'onde uni-dimensionnels ne modifie pas les propriétés de la lumière émise par les boîtes et collectée dans la direction z ($[001]$). Des simulations FDTD (finite difference time domain) comme celles représentées sur la figure (2.11) ont donc été réalisées avec le logiciel Meep, afin d'évaluer le diagramme d'émission d'un dipôle ponctuel situé dans un guide d'onde, tel que celui schématisé dans la figure (2.11.a). Les figures (2.11.b) et (2.11.c) montrent l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle situé au centre d'un guide d'onde de $2 \mu\text{m}$ de large, lorsque celui-ci est polarisé selon la direction x du guide d'onde ($[110]$), et selon la direction perpendiculaire y ($[1\bar{1}0]$). Nous voyons ainsi d'une part que la luminescence détectée provient principalement de la surface du guide, l'efficacité d'extraction pourrait de ce fait être proche de celle rencontrée au niveau d'un dioptre plan semi-conducteur/air, à savoir approximativement 3% lorsque celle-ci est collectée par un objectif de microscope d'ouverture numérique 0.5. Cette valeur n'est cependant qu'une estimation car dans le cas d'un guide d'onde tel que le notre, en fonction du couplage d'un dipôle au mode du guide, l'efficacité d'extraction peut être fortement modifiée, comme l'a montré Guillaume Lecamp dans sa thèse [106]. D'autre part, nous constatons que l'amplitude du champ, dans le cas d'une dipôle polarisé selon y (figure



(a) structure considérée

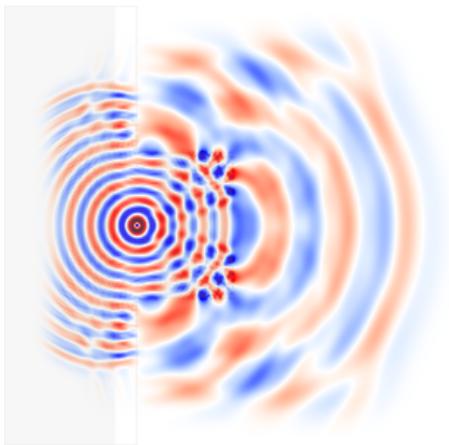
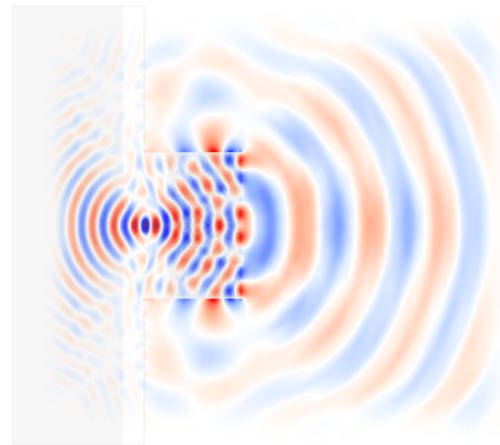
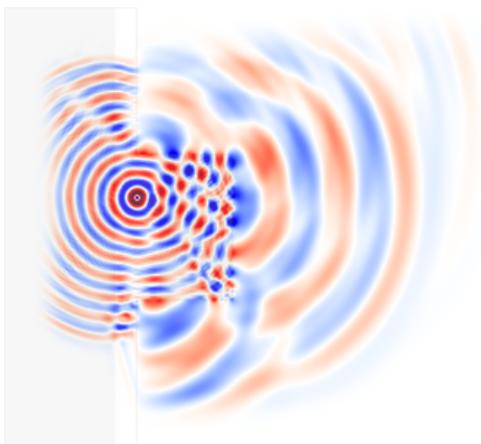
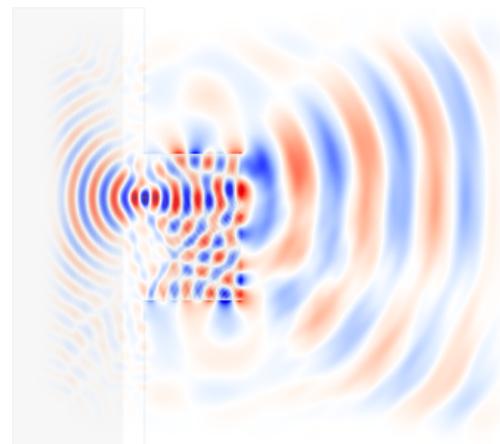
(b) dipôle polarisé selon la direction x du guide(c) dipôle polarisé selon la direction y perpendiculaire au guide(d) dipôle polarisé selon la direction x du guide(e) dipôle polarisé selon la direction y perpendiculaire au guide

FIGURE 2.11 : Simulations FDTD réalisées au moyen du logiciel Meep de l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle unique inséré au centre d'un guide d'onde représenté en (a), pour un dipôle situé au centre du guide et polarisé (b) selon $[110]$ et (c) selon $[1\bar{1}0]$ et pour un dipôle situé à $0.4 \mu\text{m}$ du centre du guide et polarisé (d) selon $[110]$ et (e) selon $[1\bar{1}0]$.

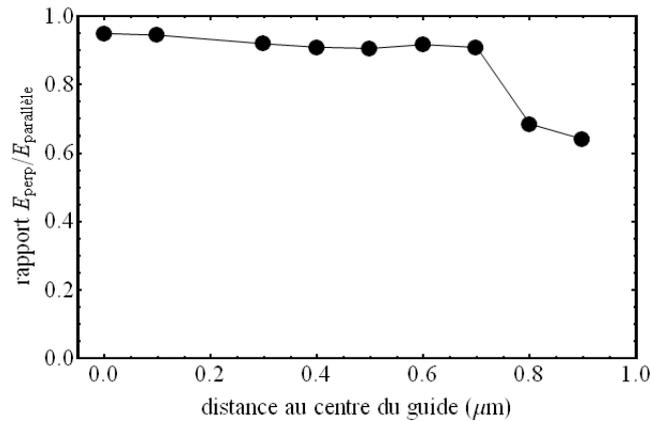
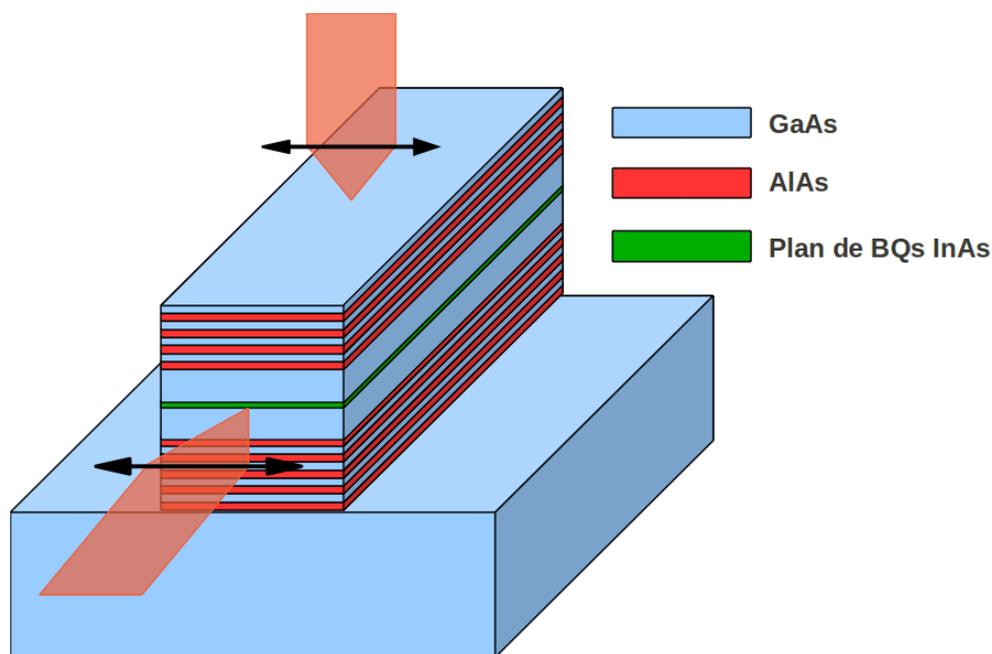


FIGURE 2.12 : Rapport des champs E_{\perp}/E_{\parallel} en fonction de la distance (selon y) du dipôle par rapport au centre du guide.

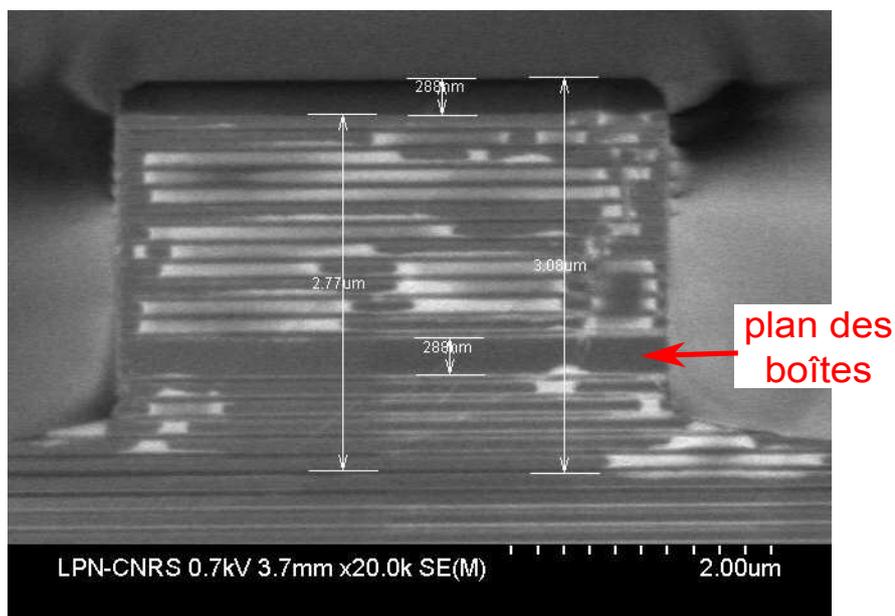
(2.11.c)), vaut 95% de celle du champ collecté pour un dipôle polarisé parallèlement au guide (figure (2.11.b)), soit $I_{\perp} = 90 \% I_{\parallel}$.

De même, les figures (2.11.d) et (2.11.e) montrent l'amplitude du champ électrique émis par un dipôle décalé latéralement (selon y) de $0.4 \mu\text{m}$ par rapport au centre du guide, lorsque celui-ci est polarisé selon la direction parallèle, et selon la direction perpendiculaire. Nous trouvons là encore un rapport du même ordre de grandeur que le précédent. Comme le montre la figure (2.12) sur laquelle est tracé le rapport E_{\perp}/E_{\parallel} en fonction de la position latérale du dipôle dans le guide, cela reste le cas tant que que le dipôle est à plus de $0.2 \mu\text{m}$ des bords du guide d'onde, le rapport des intensités tombant alors à 70%. Les boîtes que nous étudions étant celles de plus forte intensité, nous estimons qu'elles sont proches du maximum du mode et donc comprises entre $\pm 0.5 \mu\text{m}$ du centre du guide. Cela signifie que lors d'expériences en polarisation, telles que celles présentées au cinquième chapitre, la présence d'un guide d'onde uni-dimensionnel influence peu sur les résultats expérimentaux et l'anisotropie mesurée pour la luminescence des boîtes témoigne bien de leurs propriétés intrinsèques.

Notons que la faible efficacité d'extraction de nos structures et l'imperfection du guidage du laser d'excitation dans le plan des boîtes pose un frein à la réalisation d'expériences sous excitation résonnante. En effet, à forte puissance d'excitation, la raie de luminescence étudiée est assez rapidement masquée par l'intensité du laser diffusé aux interfaces du guide d'onde et il nous est par exemple impossible d'observer des oscillations de Rabi au delà de deux périodes. Dans le but d'améliorer cette efficacité d'extraction, de nouveaux échantillons ont été réalisés, dans lesquels les guides d'onde sont constitués de miroirs de Bragg, comme cela est montré dans la figure (2.13). Un échantillon dont la coupe transverse est représentée sur l'image (2.13.b), constitué de 24 miroirs de Bragg au dessus du plan des boîtes



(a) structure d'un guide



(b) image TEM de la coupe transversale d'un guide

FIGURE 2.13 : Structure du nouvel échantillon en cours de caractérisation. (a) Schéma de principe de la structure, le plan des boîtes est inséré entre deux couches de miroirs de Bragg. (b) Image TEM de la coupe transversale d'un guide d'onde, constitué de 24 miroirs de Bragg dans sa partie supérieure et de 12 dans sa partie inférieure. La gravure du guide a été effectuée par ICP (inductively coupled plasma).

et de 12 en dessous, est actuellement en cours de caractérisation. Les premières mesures effectuées nous ont montré qu'une telle structure multipliait par quinze la luminescence détectée dans la direction z , perpendiculaire au plan des boîtes. Ces nouveaux échantillons étant cependant toujours en cours d'étude préliminaire, ils ne seront pas considérés par la suite.

2.2 Dispositif expérimental

2.2.1 Schéma général

Le montage expérimental, représenté sur la figure (2.14) se divise en quatre grandes parties que nous étudierons séparément au cours de ce chapitre. Tout d'abord la source d'excitation est composée d'un laser Titane-Saphir qui passe par un système de filtrage spatial, composé de l'objectif O_1 , d'un trou de $10\mu m$ de diamètre et de la lentille L_1 , avant d'être focalisé sur l'échantillon, soit par l'objectif O_2 afin de coupler le laser incident à l'un des guides d'onde présents sur notre échantillon (configuration habituelle), soit par l'objectif O_3 . La luminescence des boîtes peut ensuite être collectée soit perpendiculairement à l'échantillon par l'objectif O_3 (configuration habituelle), soit par la face clivée de l'échantillon en utilisant l'objectif O_4 . Elle passe ensuite par un système confocal, composé des lentilles L_2 et L_3 et d'un trou de $50\mu m$ de diamètre, permettant de filtrer spatialement le signal issu des objectifs de détection et de réduire ainsi le nombre de boîtes dont la luminescence est détectée, avant d'être focalisée sur la fente d'entrée d'un spectromètre au moyen de la lentille L_4 . Elle peut ensuite être soit envoyée sur une caméra CCD (charge-coupled device), permettant de réaliser des spectres de photoluminescence, soit sur une fente de sortie. Derrière cette seconde fente se trouve un dispositif type Hanbury Brown et Twiss constitué d'un cube séparateur et de deux photo-diodes à avalanche (APD), de résolution temporelle $300 ps$ avec un bruit de $20 coups/s$, qui seront utilisées pour réaliser l'auto-correlation du signal. Nous pouvons aussi utiliser seulement une seule de ces diodes pour étudier la décroissance temporelle de la luminescence émise par une boîte, la synchronisation avec l'excitation étant alors réalisée par une photo-diode rapide placée en sortie du laser.

L'échantillon est inséré dans un cryostat où il est refroidi par contact avec un bain d'hélium permettant de le maintenir à une température de $7 K$. À l'intérieur de ce cryostat, il est fixé sur un porte échantillon muni de deux résistances Allen-Bradley permettant d'en contrôler et modifier la température.

Un jeu de miroirs pivotant permet par ailleurs dans certains cas de faire passer le laser d'excitation par une ligne à retard constituée d'un interféromètre de Michelson stabilisé en phase. Celle-ci est utilisée au cours des expériences de contrôle cohérent pour exciter le système à deux niveaux au moyen de deux impulsions successives de même intensité,

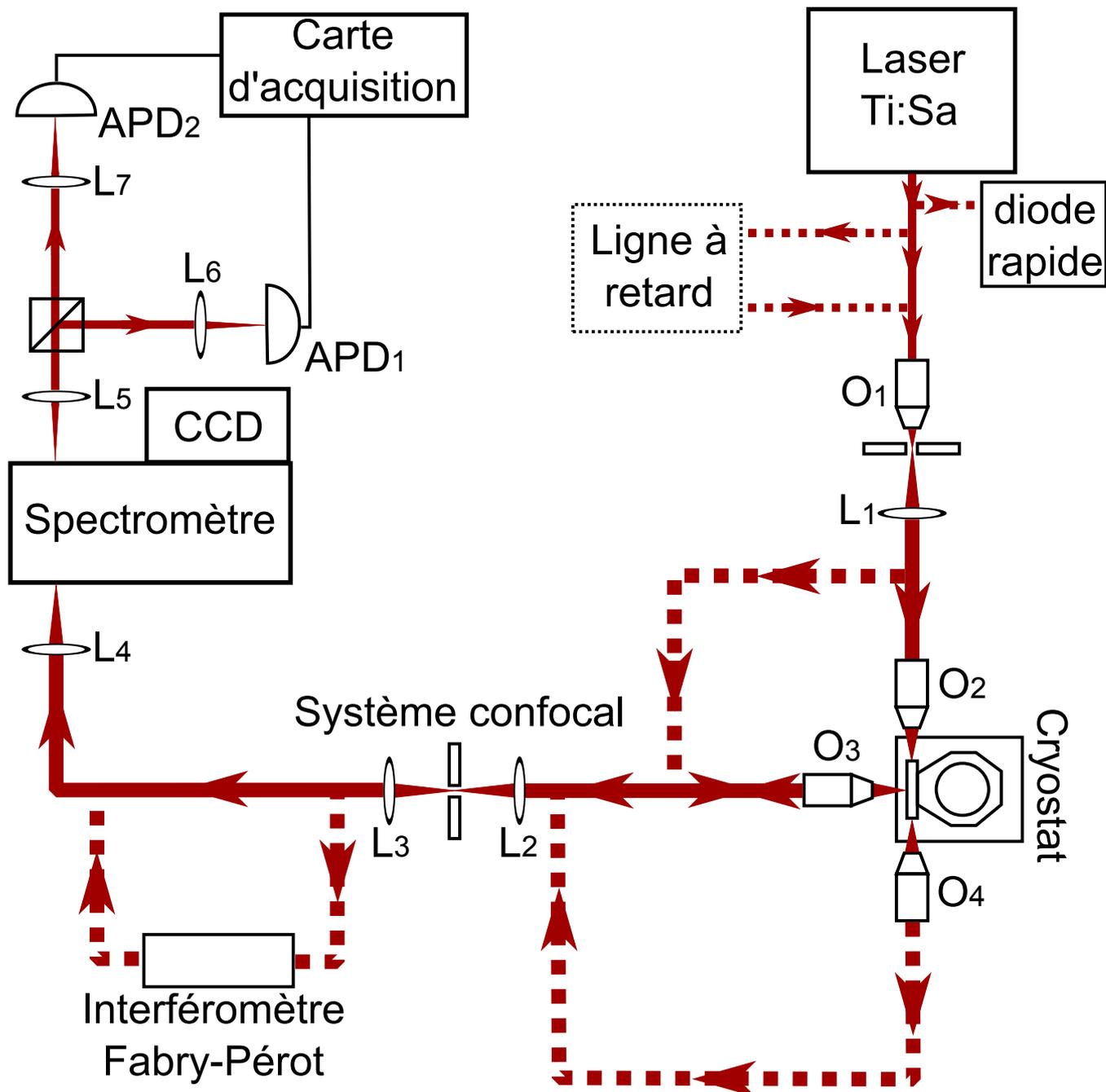


FIGURE 2.14 : Schéma général du montage expérimental.

séparées temporellement d'un délai δ précisément contrôlé, et déphasée l'une par rapport à l'autre d'une quantité ϕ , elle aussi précisément contrôlée. De même, un autre jeu de miroirs placés cette fois sur le chemin de détection, en sortie du système confocal, permet de faire passer la luminescence détectée à travers un interféromètre de Fabry-Pérot, utilisé comme filtre interférentiel pour améliorer la résolution spectrale du dispositif expérimental.

Ce dispositif expérimental a été mis en place progressivement depuis la thèse de Romain Melet [18] et a été constamment amélioré et développé depuis, durant la thèse d'Alexandre Enderlin [19] et la mienne. Au cours de celle-ci, les contributions les plus importantes ont été la mise en place de l'interféromètre de Fabry-Pérot et la réalisation du montage Hanbury Brown et Twiss. L'évolution prochaine du montage consistera, comme nous le présenterons au dernier chapitre, au développement d'un dispositif type Hong-Ou-Mandel en sortie du spectromètre.

2.2.2 Dispositif d'excitation

Source laser

L'excitation est réalisée au moyen d'un laser Titane-Saphir, modèle Tsunami de la marque Spectra Physics, pompé par un laser solide Nd : YVO₄ doublé, intracavité par un cristal de LBO, fournissant un faisceau d'une puissance de 10 W à 532 nm. Le jeu de miroirs situé à l'intérieur de la cavité laser permet alors, grâce à un filtre de Lyot, d'accorder la longueur d'onde d'émission du laser Titane-Saphir entre 695 nm et 1085 nm. La puissance de sortie du laser aux longueurs d'onde correspondant aux boîtes quantiques étudiées (900 nm à 960 nm) est proche de 1.5 W pour une puissance de pompe de 8.5–9 W. Le laser est polarisé verticalement (selon y).

Il s'agit d'un laser à blocage de modes (mode-locked) fonctionnant en régime d'impulsions femtosecondes ou picosecondes. Nous choisissons cependant de n'utiliser que des impulsions picoseconde afin de limiter la largeur spectrale de l'excitation et n'être à la résonance qu'avec une seule transition. Par ailleurs, les mesures de temps de vie nécessitent de impulsions beaucoup plus courtes que le temps de décroissance T_1 de la luminescence. Celui-ci étant compris entre 500 ps et 1.2 ns, des impulsions de 2 ps sont suffisamment courtes pour pouvoir réaliser ces mesures. De même, des expériences de contrôle cohérent et d'oscillations de Rabi nécessitent des impulsions d'une durée inférieure au temps de cohérence T_2 du système à deux niveaux étudié, qui est supérieur à 200 ps. Là encore des impulsions de 2 ps peuvent être utilisées. Bien que les impulsions femtosecondes vérifient encore mieux ces deux conditions, leur largeur spectrale est trop importante et elles ne permettent pas de n'exciter qu'une seule transition optique.

Filtrage spatial

Avant d'être focalisé sur l'échantillon au moyen des objectif O_2 ou O_3 , le faisceau laser d'excitation est tout d'abord filtré spatialement en étant focalisé, au moyen de l'objectif O_1 d'ouverture numérique 0.35 et de distance focale de 1.2 cm, dans un trou de filtrage de 10 μm de diamètre, situé dans le plan focal objet d'une lentille de distance focale de 8 cm. Ce trou de filtrage sert alors de point source à toute la suite du dispositif optique et c'est l'image de celui-ci qui est réalisée sur l'échantillon, puis sur la fente d'entrée du spectromètre. La source laser et le cryostat étant situés sur deux tables différentes, un tel système nous permet de nous affranchir des éventuelles variations spatiales du faisceau d'excitation, dues au déplacement d'une table par rapport à l'autre, ainsi que de celles pouvant être engendrées lorsque du chemin d'excitation direct, nous basculons sur le chemin passant par la ligne à retard, située avant ce trou de filtrage, et inversement. En effet, ce trou définissant à lui seul la position de la tâche d'excitation, quels que soient les déplacements du laser en amont du système de filtrage, cette tâche ne bougera pas et le couplage au guide d'onde contenant les boîtes étudiées ne sera pas modifié. Par ailleurs, ce système permet également d'élargir d'un facteur 7 le faisceau d'excitation qui possède alors un diamètre de l'ordre de la dizaine de millimètres. Ainsi, la surface de la lentille d'entrée, de 3 mm de diamètre, de l'objectif de microscope utilisé pour focaliser l'excitation sur l'échantillon est largement couverte, permettant ainsi d'obtenir la tâche d'excitation la plus petite possible, c'est à dire limitée uniquement par la diffraction et permettant un déplacement vertical et horizontal de l'objectif de microscope pour pouvoir coupler l'excitation à différents guides d'onde.

Objectifs de microscope

Les trois autres objectifs de microscope utilisés dans ce montage, servent à focaliser le laser d'excitation sur l'échantillon et à détecter la luminescence émise par les boîtes. Les deux objectifs latéraux, O_2 servant à coupler l'excitation à l'entrée d'un guide d'onde et O_4 servant à détecter la luminescence en sortie d'un guide, sont identiques et ont une ouverture numérique de 0.45, une distance focale de 0.5 cm et une distance frontale de 1.7 cm. L'objectif O_4 permettant de détecter la luminescence dans la direction perpendiculaire à la surface de l'échantillon possède quant à lui une ouverture numérique de 0.55, une distance focale de 0.4 cm et une distance frontale de 0.7 cm.

Le diamètre de la tâche d'excitation issue de l'objectif O_2 est, comme nous l'avons précédemment mentionné, limitée par la diffraction de l'objectif et est alors donnée par la formule :

$$d_{tache} = 1.22 \frac{\lambda}{O.N} \quad (2.20)$$

où λ est la longueur d'onde et $O.N$ l'ouverture numérique. Nous trouvons ainsi à 900 nm

une tâche d'excitation de $2.5 \mu m$ de diamètre, ce qui est légèrement supérieur à l'extension spatiale transverse des modes d'un guide d'onde de $2 \mu m$ de largeur.

Les trois objectifs de détection sont montés sur des translations piézoélectriques permettant de régler finement leur position dans les trois directions de l'espace.

2.2.3 Ligne à retard

Sur le chemin d'excitation, entre le laser Titane-Saphir et le système de filtrage spatial, est intercalée au moyen d'un jeu de miroirs amovibles, une ligne à retard constituée par un interféromètre de Michelson stabilisé en phase [18, 19]. Cet interféromètre permet de dédoubler une impulsion laser en deux impulsions de même intensité, décalées temporellement et déphasées l'une par rapport à l'autre d'une quantité ϕ précisément contrôlée et stabilisée [107, 108]. Afin d'assurer cette stabilité, un asservissement est réalisé au moyen d'un laser Hélium-Néon parcourant l'interféromètre parallèlement au laser Titane-Saphir servant à exciter les boîtes quantiques. Le principe de cet interféromètre est schématisé sur la figure (2.15).

Le faisceau du laser Titane-Saphir, représenté en bleu sur la figure (2.15), est séparé au moyen d'un cube séparateur non polarisant, en deux faisceaux d'intensité identique, chacun partant dans un des bras de l'interféromètre. Au bout de l'un d'eux, qui sera qualifié de "fixe", se trouve un rétro-rélecteur monté sur un déplacement piézoélectrique permettant des déplacements sur une échelle inférieure à la longueur d'onde du laser, tandis que le second, qualifié lui de "mobile", s'achève sur un rétro-rélecteur monté sur une platine de translation permettant un déplacement total de 30 cm par pas de l'ordre de 0.1 mm . Les deux faisceaux incidents ainsi réfléchis au bout de chaque bras se superposent au niveau du cube séparateur, avant d'être envoyés vers l'échantillon.

Nous voyons qu'en changeant précisément la longueur du bras mobile de l'interféromètre, il est possible de décaler temporellement l'impulsion issue du bras mobile par rapport à celle issue du bras fixe, de manière à exciter l'échantillon au moyen de deux impulsions successives, séparées d'une durée δ précisément contrôlée.

La modification de la phase relative des deux impulsions et la stabilisation de celle-ci sont réalisées en contrôlant l'intensité des interférences du laser Hélium-Néon continu, stabilisé en fréquence, qui parcourt l'interféromètre parallèlement au faisceau du laser Titane-Saphir et dont le trajet est représenté en rouge sur la figure (2.15). Celui-ci est polarisé verticalement lorsqu'il arrive au niveau du cube séparateur, qui le scinde en deux faisceaux d'égale intensité, partant chacun dans un des bras de l'interféromètre. Alors que le faisceau dirigé dans le bras fixe n'est pas modifié et est simplement réfléchi sur le rétro-rélecteur monté sur déplacement piézoélectrique, celui dirigé dans le bras mobile passe à

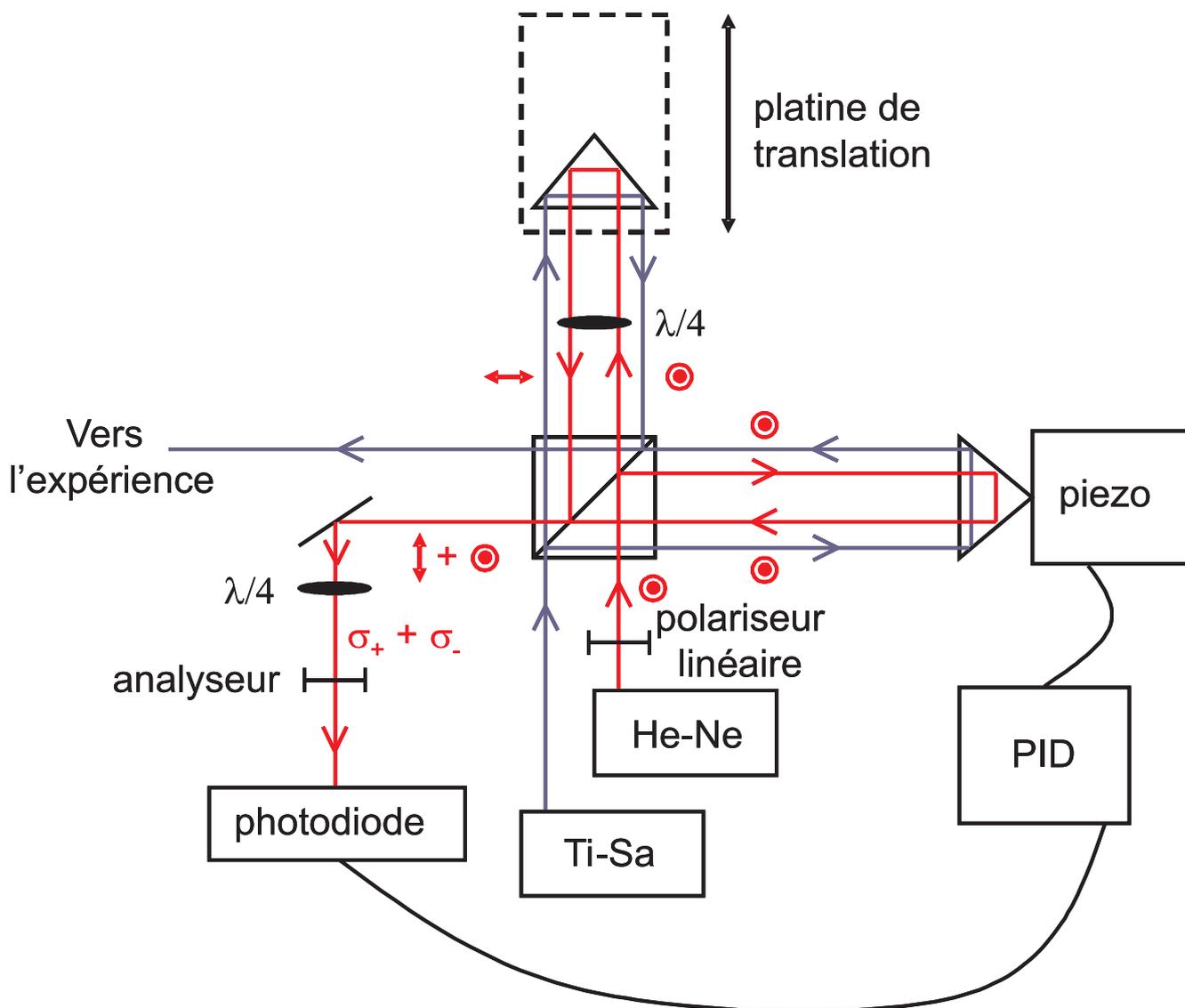


FIGURE 2.15 : Schéma de l'interféromètre de Michelson stabilisé. La trajectoire suivie par le laser Titane-Saphir est représentée en bleu et celle suivie par le laser Hélium-Néon est représentée en rouge, de même que les symboles représentant la polarisation de celui-ci.

deux reprises dans une lame quart-d'onde dont les axes sont orientés à 45° de la verticale, transformant ainsi la polarisation verticale en circulaire au premier passage par la lame, puis en horizontale au second passage. Les deux faisceaux du laser Hélium-Néon se recombinant sur le cube séparateur sont donc de même intensité, l'un polarisé verticalement et l'autre polarisé horizontalement. Ils passent ensuite tous deux par une nouvelle lame quart d'onde rendant leur polarisation circulaire, respectivement droite et gauche. La polarisation de l'onde résultante est donc linéaire selon une direction définie par le déphasage ϕ entre les ondes issues de chaque bras de l'interféromètre. Cette onde résultante passe alors par

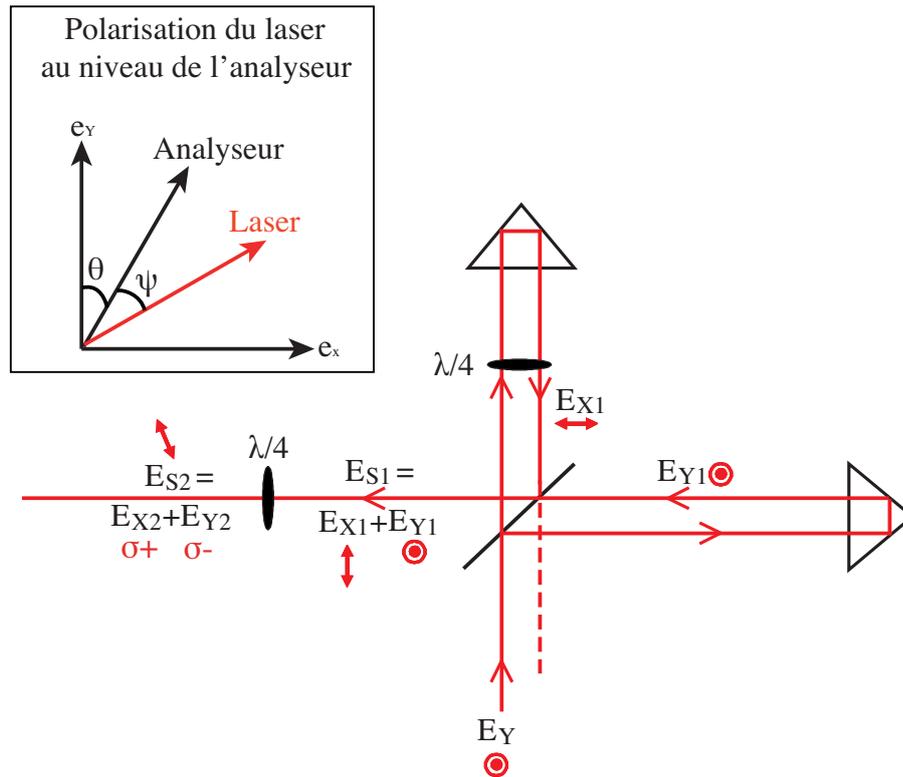


FIGURE 2.16 : Schéma simplifié montrant les changements de la polarisation du laser de contrôle dans l'interféromètre.

un analyseur dont la direction peut être précisément modifiée au moyen d'un moteur pas à pas, avant d'être envoyée sur une photo-diode connectée à un système d'asservissement du déplacement piézoélectrique sur lequel est monté le rétro-rélecteur du bras fixe.

Contrôle du déphasage relatif entre les deux impulsions

Comme nous venons de le voir, à la sortie du cube séparateur se superposent une onde \mathbf{E}_{Y1} issue du bras fixe de l'interféromètre, polarisée verticalement selon l'axe y et une onde \mathbf{E}_{X1} issue du bras mobile, polarisée horizontalement selon l'axe x . L'onde résultante est alors de polarisation elliptique et peut se mettre sous la forme :

$$\mathbf{E}_{S1} = \mathbf{E}_{X1} + \mathbf{E}_{Y1} = \frac{E_0}{2} \cos(\omega t + \phi) \mathbf{u}_x + \frac{E_0}{2} \cos(\omega t) \mathbf{u}_y \quad (2.21)$$

où E_0 est l'amplitude du champ incident sur le cube et ϕ le déphasage relatif entre les ondes issues de chaque bras. La figure (2.16) détaille l'évolution de la polarisation du laser Hélium-Néon dans l'interféromètre.

Cette onde \mathbf{E}_{S1} traverse ensuite une lame quart d'onde dont les axes neutres sont orientés à 45° des axes x et y , selon les directions x' et y' . En projetant sur les axes neutres

de la lame, nous pouvons réécrire les champs \mathbf{E}_{X1} et \mathbf{E}_{Y1} sous la forme :

$$\begin{cases} \mathbf{E}_{X1} = \frac{E_0}{2} \cos(\omega t + \phi) (\cos(\frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_{x'} - \sin(\frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_{y'}) = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \cos(\omega t + \phi) (\mathbf{u}_{x'} - \mathbf{u}_{y'}) \\ \mathbf{E}_{Y1} = \frac{E_0}{2} \cos(\omega t) (\sin(\frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_{x'} + \cos(\frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_{y'}) = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \cos(\omega t) (\mathbf{u}_{x'} + \mathbf{u}_{y'}) \end{cases} \quad (2.22)$$

qui deviennent après passage par la lame quart d'onde :

$$\begin{cases} \mathbf{E}_{X2} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} (\cos(\omega t + \phi - \frac{\pi}{2}) \mathbf{u}_{x'} - \cos(\omega t + \phi) \mathbf{u}_{y'}) \\ \mathbf{E}_{Y2} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} (\cos(\omega t - \frac{\pi}{2}) \mathbf{u}_{x'} + \cos(\omega t) \mathbf{u}_{y'}) \end{cases} \quad (2.23)$$

soit :

$$\begin{cases} \mathbf{E}_{X2} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} (\sin(\omega t + \phi) \mathbf{u}_{x'} - \cos(\omega t + \phi) \mathbf{u}_{y'}) \\ \mathbf{E}_{Y2} = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} (\sin(\omega t) \mathbf{u}_{x'} + \cos(\omega t) \mathbf{u}_{y'}) \end{cases} \quad (2.24)$$

Nous trouvons donc deux ondes polarisées circulairement, respectivement gauche et droite, et l'onde résultante est de la forme :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{S2} &= \mathbf{E}_{X2} + \mathbf{E}_{Y2} \\ &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} [(\sin(\omega t + \phi) + \sin(\omega t)) \mathbf{u}_{x'} + (-\cos(\omega t + \phi) + \cos(\omega t)) \mathbf{u}_{y'}] \\ &= \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \left[2 \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \cos(\frac{\phi}{2}) \mathbf{u}_{x'} - 2 \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \sin(\frac{-\phi}{2}) \mathbf{u}_{y'} \right] \\ &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \left[\cos(\frac{\phi}{2}) \mathbf{u}_{x'} + \sin(\frac{\phi}{2}) \mathbf{u}_{y'} \right] \\ &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \left[\cos(\frac{\phi}{2}) \frac{\mathbf{u}_x + \mathbf{u}_y}{\sqrt{2}} + \sin(\frac{\phi}{2}) \frac{-\mathbf{u}_x + \mathbf{u}_y}{\sqrt{2}} \right] \\ &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \left[-2 \sin(\frac{\phi}{2} - \frac{\pi}{4}) \sin(\frac{\pi}{4}) \frac{\mathbf{u}_x}{\sqrt{2}} + 2 \cos(\frac{\phi}{2} - \frac{\pi}{4}) \cos(\frac{\pi}{4}) \frac{\mathbf{u}_y}{\sqrt{2}} \right] \\ &= \frac{E_0}{\sqrt{2}} \sin(\omega t + \frac{\phi}{2}) \left[-\sin(\frac{\phi}{2} - \frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_x + \cos(\frac{\phi}{2} - \frac{\pi}{4}) \mathbf{u}_y \right] \end{aligned} \quad (2.25)$$

La polarisation de l'onde résultante \mathbf{E}_{S2} est donc linéaire et forme un angle $\phi/2 - \pi/4$ avec l'axe y .

Après son passage par la lame quart d'onde, le laser est envoyé sur un analyseur dont la direction forme un angle θ avec la verticale y , comme l'illustre la figure (2.16). L'angle ψ entre la direction $\phi/2 - \pi/4$ du laser et celle de l'analyseur est donc donné par :

$$\psi = \frac{\phi}{2} - \theta - \frac{\pi}{4} \quad (2.26)$$

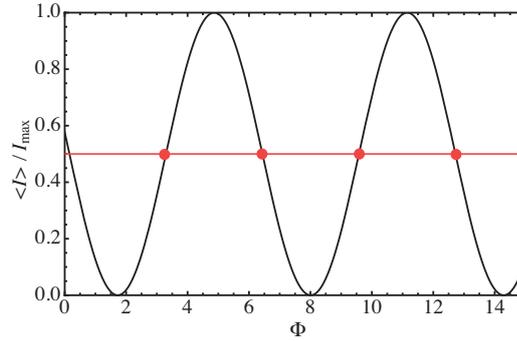


FIGURE 2.17 : Variations de l'intensité lumineuse arrivant sur la photodiode en fonction du déphasage relatif ϕ entre les ondes issues des deux bras de l'interféromètre. La valeur de la consigne d'asservissement (droite rouge) est fixée à l'endroit où la tangente à la courbe noire possède la pente la plus grande (points rouges).

et l'intensité moyenne en sortie de l'analyseur s'écrit :

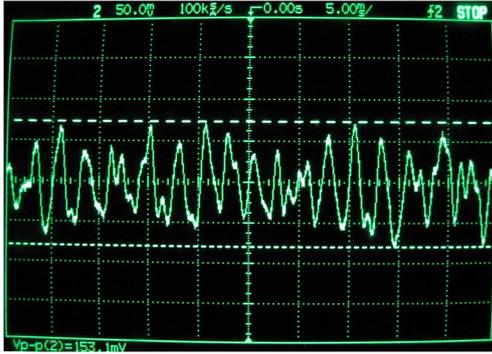
$$\langle I \rangle = \frac{1}{2} \left(\frac{E_0}{\sqrt{2}} \right)^2 \cos^2 \psi = \frac{E_0^2}{4} \cos^2 \left(\frac{\phi}{2} - \theta - \frac{\pi}{4} \right) \quad (2.27)$$

Sur la figure (2.17) est tracée l'intensité normalisée $\langle I \rangle / (E_0^2/4)$ en fonction du déphasage relatif ϕ entre les ondes issues des deux bras de l'interféromètre, pour un angle θ fixé.

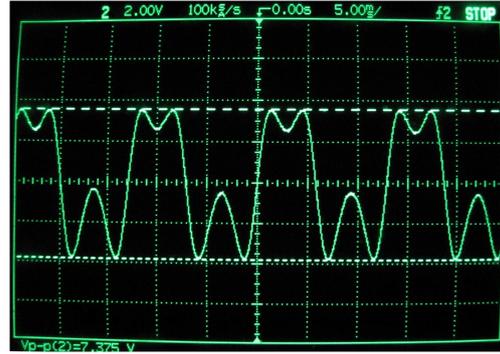
Nous voyons ainsi comment l'intensité mesurée par la photo-diode placée derrière l'analyseur permet, pour un angle θ fixé, de remonter au déphasage ϕ entre l'onde issue du bras fixe et celle issue du bras mobile. Pour contrôler ce déphasage, une contre-réaction est réalisée sur la position du rétro-rélecteur monté sur déplacement piézoélectrique, situé à l'extrémité du bras fixe. Pour ce faire, l'intensité moyenne $\langle I \rangle$ détectée par la photo-diode est comparée à une valeur de référence $\langle I_0 \rangle$ servant de consigne à la boucle d'asservissement du déplacement piézoélectrique, réalisée au moyen d'un régulateur proportionnel intégral dérivé (PID). Celui-ci permet en effet d'appliquer une tension modifiant la position du rétro-rélecteur, de manière à conserver $\langle I \rangle = \langle I_0 \rangle$.

Ainsi, pour un angle θ donné, la stabilité du déphasage relatif ϕ entre l'onde issue du bras fixe et celle issue du bras mobile est assurée, et il est possible de faire précisément varier celle-ci en modifiant la direction de l'analyseur. En effet, lorsque l'angle θ change, pour que la relation $\langle I \rangle = \langle I_0 \rangle$ soit conservée, il faut que ϕ soit également modifié, en déplaçant le rétro-rélecteur monté sur piézoélectrique.

Nous venons de voir comment, au moyen d'un laser de contrôle, nous pouvons stabiliser et modifier le déphasage entre les ondes issues des deux bras de l'interféromètre. Pour optimiser la qualité de cette stabilisation, la consigne $\langle I_0 \rangle$ doit être choisie judicieusement, afin que l'amplitude des fluctuations de $\langle I \rangle$ engendre les plus faibles fluctuations de ϕ



(a) contre-réaction branchée



(b) contre-réaction débranchée

FIGURE 2.18 : Oscillogrammes représentant la variation de tension aux bornes de la photo-diode (a) lorsque l'asservissement fonctionne et (b) lorsque la contre-réaction est débranchée et le déplacement piézoélectrique est branché à un générateur de tension sinusoïdale.

possibles. Pour cela, il faut choisir la valeur de la consigne de manière à ce que aux points d'abscisse $\langle I_0 \rangle$, la pente de la courbe $\langle I \rangle(\phi)$ représentée sur la figure (2.17), soit la plus grande possible en valeur absolue. Il faut donc avoir :

$$\frac{d \langle I \rangle}{d\phi} = -\frac{E_0^2}{8} \sin\left(\phi - 2\theta - \frac{\pi}{2}\right) = -\frac{E_0^2}{8} \quad (2.28)$$

et nous devons de ce fait choisir :

$$\langle I_0 \rangle = \frac{I_{max}}{2} = \frac{E_0^2}{8} \quad (2.29)$$

La droite vérifiant cette relation est tracée en rouge sur la figure (2.17) et les valeurs $\langle I_0 \rangle$ permettant la meilleure stabilité de l'interféromètre sont les abscisses des points d'intersection des courbes (2.27) en noir et (2.29) en rouge.

Le signal mesuré par la photo-diode est une tension U , proportionnelle à l'intensité lumineuse. Pour évaluer la précision de la stabilisation réalisée ici, il nous faut donc comparer les fluctuations du signal ΔU_0 mesuré par la photo-diode lorsque le déplacement piézoélectrique est branché à la contre-réaction, représentées sur la figure (2.18.a), à l'amplitude $U_{max} \propto I_{max}$ des oscillations obtenues lorsque le déplacement piézoélectrique n'est pas branché à la contre réaction, mais à un générateur basse fréquence délivrant une tension sinusoïdale. Ce deuxième cas de figure est illustré par la figure (2.18.b), sur laquelle nous remarquons que le signal reçu par la photo-diode n'est pas sinusoïdal car la fréquence de la tension appliquée n'est pas un multiple de la longueur d'onde du laser de contrôle.

Les deux oscillogrammes de la figure (2.18) nous permettent de déterminer $\Delta U_0 = 0.15 V$ et $U_{max} = 7.4 V$. Les fluctuations de l'intensité ΔI_0 autour de $\langle I_0 \rangle$ étant reliées

aux fluctuations $\Delta\phi$ du déphasage relatif des deux ondes issues de l'interféromètre par la relation :

$$\Delta I_0 = \frac{E_0^2}{8} \Delta\phi = \frac{I_{max}}{2} \Delta\phi \quad (2.30)$$

nous en déduisons :

$$\Delta\phi = \frac{2\Delta I_0}{I_{max}} = \frac{2\Delta U_0}{U_{max}} = \frac{2 \times 0.150}{7.4} = 0.04 \text{ rad} \quad (2.31)$$

soit une précision d'environ 3° sur la stabilité du déphasage ϕ . Les fluctuations de position du miroir asservi ont pour amplitude :

$$\Delta L = \Delta\phi \frac{\lambda}{2\pi} = \frac{\lambda}{157} \quad (2.32)$$

2.2.4 Dispositif de détection

La luminescence émise par les boîtes est collectée par les mêmes objectifs de microscopes O_2 , O_3 ou O_4 que ceux servant à l'excitation. Elle passe ensuite par un système confocal avant d'être focalisée par la lentille L_4 sur la fente d'entrée de notre spectromètre à réseau, où elle est analysée au moyen d'une caméra CCD.

Imagerie de la surface de l'échantillon

Pour faciliter les réglages, nous réalisons au moyen d'une lame semi-réfléchissante amovible placée en sortie de l'objectif O_3 , l'image de la surface de l'échantillon. Le dispositif permettant cette imagerie est présenté sur la figure (2.19). La surface de l'échantillon est éclairée en lumière blanche à travers l'objectif de microscope O_3 , par lequel est également collecté le signal issu de cette surface qui est ensuite partiellement réfléchi sur la lame semi-réfléchissante et envoyé sur une caméra CCD de contrôle. C'est ainsi qu'ont été obtenues les images présentées dans la figure (2.9). L'observation de la surface de l'échantillon permet, en plus de sélectionner le guide d'onde à exciter, de focaliser l'objectif de détection sur la zone à étudier et de régler la position de l'objectif d'excitation O_2 .

Il nous est également possible, au moyen d'une autre lame semi-réfléchissante, d'observer la réflexion du laser d'excitation sur la face clivée de l'échantillon, comme la montre la figure (2.19.c). Nous n'utilisons pas dans ce cas de lumière blanche, mais focalisons le laser sur la face clivée au moyen de l'objectif O_2 et récoltons, avec ce même objectif le laser réfléchi. Cette image est utilisée pour régler la position latérale, de même que la focalisation de l'objectif d'excitation O_2 . En effet, le mode du guide étant très près de la surface de l'échantillon, il nous suffit de positionner l'objectif de manière à ce que la tâche d'excitation soit sur l'échantillon, à la limite échantillon/air et nous pouvons ensuite regarder la luminescence de la couche de mouillage par l'objectif O_3 pour affiner le réglage.

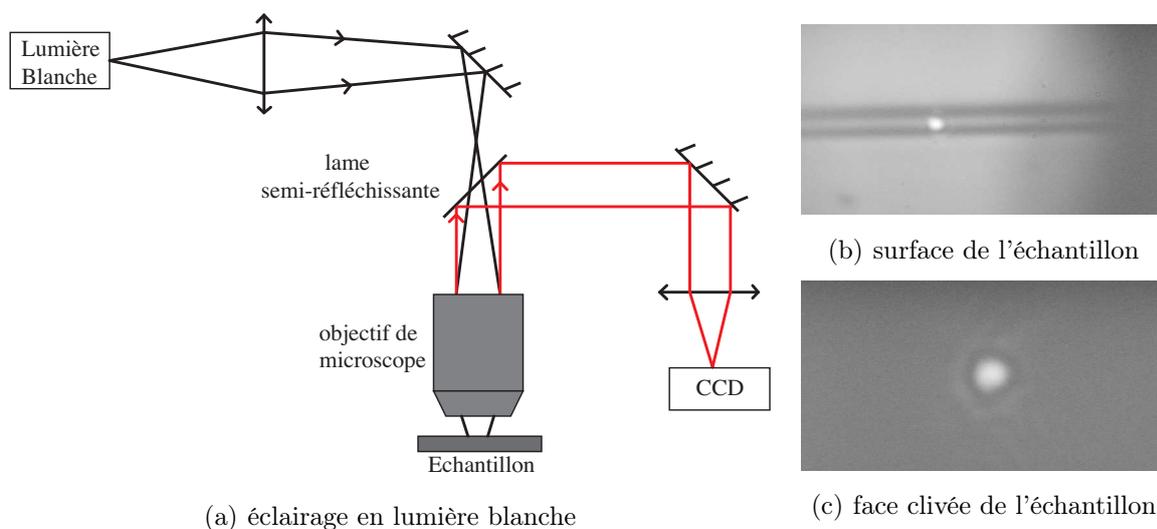


FIGURE 2.19 : *Imagerie en lumière blanche de la surface de l'échantillon. a) Principe du montage, b) image d'un guide d'onde sur lequel est focalisé le laser au moyen de l'objectif O_3 et c) focalisation du laser sur la face clivée de l'échantillon par l'objectif O_2 .*



FIGURE 2.20 : *(a) Système confocal sélectionnant les rayons les moins inclinés (rayons rouges) provenant d'un disque de $1 \mu\text{m}$ de diamètre sur la surface de l'échantillon. La zone de l'échantillon observée est la région entourée sur l'image (b).*

Système confocal

La luminescence issue des objectifs O_3 (configuration habituelle) ou O_4 est alors envoyée sur un système confocal constitué de deux lentilles L_2 et L_3 de distance focale 20 cm et d'un trou de $50 \mu\text{m}$ de diamètre, situé dans le plan focal image de la première lentille et dans le plan focal objet de la seconde. Ce dispositif permet de sélectionner dans le champ recueilli par l'objectif de microscope, l'émissions des boîtes contenues dans une zone de $1 \mu\text{m}^2$ seulement.

En effet, la luminescence est collectée par O_3 , ce qui permet de récolter la lumière issue d'une zone d'environ $50 \mu\text{m}$ de diamètre centrée sur le guide. Comme la gravure chimique réalisée sur nos échantillons dans le but d'obtenir des guides d'onde uni-dimensionnels a également permis de supprimer les boîtes quantiques et la couche de mouillage d'InAs se

situant entre les guides d'une largeur de $1 \mu m$ à $2 \mu m$, seule la zone couverte par chaque guide d'onde contient des boîtes. Cela permet de détecter dans le champ de $8000 \mu m^2$ de l'objectif, uniquement la luminescence d'objets situés dans une zone de $50 \mu m^2$ à $100 \mu m^2$. Le nombre de boîtes quantiques situées dans une telle surface est cependant toujours beaucoup trop élevé pour que soit possible l'étude d'objets uniques isolés.

Pour en réduire encore le nombre nous réalisons, au moyen du système confocal montré sur la figure (2.20), une image intermédiaire agrandie du champ de l'objectif de collection O_3 et nous en sélectionnons une partie au moyen d'un trou de diamètre $50 \mu m$, dont l'image est réalisée sur la fente d'entrée du spectromètre. Le grandissement, γ_{conf} , du système optique composé de l'objectif O_3 et de la lentille L_2 avec l'objet placé dans le plan focal objet de l'objectif est donné par le rapport des distances focales :

$$\gamma_{conf} = \frac{f_{L_2}}{f_{O_3}} = \frac{20}{0.4} = 50 \quad (2.33)$$

Un trou de $50 \mu m$ de diamètre intercepte donc une zone de l'image intermédiaire correspondant à un disque de $1 \mu m$ de diamètre. La zone de l'échantillon sélectionnée par le trou est indiquée par un cercle rouge sur l'image (2.20). La lentille L_3 permet finalement de collimater le faisceau de luminescence issu du trou et la lentille L_4 placée devant le spectromètre forme l'image du trou sur la fente d'entrée de celui-ci.

Spectromètre

La luminescence est focalisée sur la fente d'entrée d'un spectromètre imageur Triax 550 de la marque Jobin & Yvon, muni de trois réseaux de 1200 , 600 et 100 traits.mm⁻¹. Nous utilisons pour la spectroscopie essentiellement le réseau de 1200 traits.mm⁻¹ qui nous permet d'obtenir la meilleure résolution spectrale, à savoir $45 \mu eV$, le réseau de 100 traits.mm⁻¹ étant lui privilégié pour les expériences résolues en temps.

Le signal reçu par le spectromètre peut alors être envoyé soit sur une caméra CCD, soit sur une fente de sortie, derrière laquelle il est possible de placer une caméra à balayage de fentes (Streak camera), ou un dispositif de type Hanbury, Brown et Twiss qui sera détaillé ultérieurement. La camera CCD Jobin & Yvon refroidie à l'azote liquide est une matrice de silicium bi-dimensionnelle de 1980×800 pixels, chaque pixel ayant une taille de $12 \mu m$. La luminescence est dispersée spectralement le long des 1980 pixels latéraux, tandis que la seconde direction du capteur peut être utilisée pour réaliser l'imagerie verticale de l'échantillon. Signalons que la lentille L_4 de distance focale $8 cm$ a été choisie afin qu'une tache d'un micromètre sur l'échantillon tienne verticalement sur un pixel de la CCD. Horizontalement, en utilisant le réseau de 1200 traits.mm⁻¹ du spectromètre, un pixel couvre environ $37 \mu eV$, mais l'ajustement lorentzien d'un pic de luminescence plus fin que cette résolution permet de trouver une largeur à mi-hauteur de $45 \mu eV$, qui sera la valeur retenue pour évaluer la résolution spectrale du dispositif expérimental employé ici.

Signalons par ailleurs que la réponse du système de détection, en particulier celle du réseau, dépend grandement de la polarisation du signal détecté. Ainsi, l'intensité mesurée pour un même signal envoyé avec une polarisation verticale est 40% inférieure celle mesurée pour un signal polarisé horizontalement. Lors des nombreuses mesures en polarisation que nous avons effectuées, il nous a donc fallu nous affranchir de cette réponse en utilisant un analyseur horizontal fixe placé derrière une lame demi onde qui permet de faire tourner la polarisation.

2.2.5 Interféromètre de Fabry-Pérot

La résolution de notre spectromètre étant de $45 \mu eV$, nous ne sommes pas capables de résoudre la largeur spectrale des raies d'émission de nos boîtes quantiques, qui est en moyenne de $3 \mu eV$ [109]. En outre, il nous est de même souvent impossible de résoudre la structure fine des excitons neutres, pour lesquels la valeur du splitting d'échange anisotrope [77, 78, 110] est comprise, d'après nos mesures, entre $10 \mu eV$ et $200 \mu eV$ et inférieure à $45 \mu eV$ dans 75% des cas. Afin d'améliorer la résolution de notre dispositif expérimental, deux alternatives étaient envisageables, la spectroscopie par transformée de Fourier [111] réalisée au moyen d'un interféromètre de Michelson permettant d'obtenir la figure d'auto-corrélation du champ électrique émis par une boîte quantique, ou le filtrage spectral réalisé au moyen d'un interféromètre de Fabry-Pérot, cette seconde méthode étant celle que nous avons finalement retenue.

Grâce à un jeu de miroirs pivotants, un interféromètre de Fabry-Pérot, utilisé comme filtre interférentiel accordable en fréquence, est inséré sur le chemin de détection, juste avant l'entrée du spectroscopie. La bande passante de ce filtre étant beaucoup plus étroite que la résolution du spectroscopie, c'est donc elle qui impose la résolution spectrale du dispositif de détection, en permettant par un balayage en fréquence, de reconstituer point par point la raie de luminescence de la transition considérée.

Principe de l'interféromètre de Fabry-Pérot

Considérons une cavité constituée de deux miroirs plans identiques, infiniment minces, de coefficient de réflexion et de transmission r et t supposés réels, placés parallèlement l'un en face de l'autre, à une distance d (le premier en $x = 0$ et le second en $x = d$). Une onde plane monochromatique \mathcal{E}_i de pulsation ω , se propageant vers les x croissants et polarisée parallèlement au plan d'incidence arrive en incidence normale sur le premier miroir. En écrivant le champ électrique incident sous la forme :

$$\mathcal{E}_i(x, t) = A_i e^{i(\omega t - kx)} \quad (2.34)$$

et tenant compte des conditions de continuité de la composante tangentielle du champ électrique au niveau de chaque miroir, les champs réfléchis et transmis par l'interféromètre

ont pour expression :

$$\mathcal{E}_r(x, t) = r A_i \frac{e^{-2ikd} - 1}{1 - r^2 e^{-2ikd}} e^{i(\omega t + kx)} \quad (2.35)$$

$$\mathcal{E}_t(x, t) = t^2 A_i \frac{1}{1 - r^2 e^{-2ikd}} e^{i(\omega t - kx)} \quad (2.36)$$

En considérant que l'indice de réfraction de l'air est égal à 1 et en utilisant la relation de dispersion $\omega = kc$, les intensités des ondes réfléchies $I_r = |\mathcal{E}_r|^2$ et transmises $I_t = |\mathcal{E}_t|^2$ s'écrivent donc, en fonction de l'intensité de l'onde incidente $I_i = |\mathcal{E}_i|^2$:

$$I_r(\omega) = I_i \frac{4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)}{T^2 + 4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)} \quad (2.37)$$

$$I_t(\omega) = I_i \frac{T^2}{T^2 + 4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)} \quad (2.38)$$

où $R = r^2$ et $T = t^2$ sont les coefficients de réflexion et de transmission en énergie de la cavité Fabry-Pérot et où la conservation de l'énergie se traduit par la relation $R + T = 1$. La quantité $\phi(\omega) = 2kd = 2\frac{\omega}{c}d$ représente quant à elle la différence de phase entre deux ondes successives issues de l'interféromètre, chaque onde ayant fait un aller-retour de plus que la précédente dans la cavité de longueur d .

L'intensité transmise par l'interféromètre de Fabry-Pérot présente donc la forme d'une fonction d'Airy, et nous pouvons définir l'ordre d'interférence p par :

$$\frac{\omega}{c}d = \frac{2\pi}{\lambda}d = p\pi \quad (2.39)$$

L'intensité transmise est alors maximale pour des valeurs entières de p et minimale pour des valeurs demi-entières de p . Pour observer deux résonances successives, il faut donc faire varier la longueur de la cavité de $\Delta d = \lambda/2$. Il est ainsi possible pour une longueur d'onde donnée de faire défiler les modes de la cavité en faisant varier sa longueur.

Notons que pour un interféromètre de Fabry-Pérot réel, le revêtement des miroirs de la cavité peut absorber une partie de l'énergie dont la conservation s'écrit alors $R + T + A = 1$. L'intensité transmise prend la forme :

$$I_t(\omega) = I_i \frac{T^2}{(T + A)^2 + 4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)} \quad (2.40)$$

et est donc diminuée par rapport au cas idéal.

Finesse de la cavité

La finesse \mathcal{F} d'une cavité Fabry-Pérot est définie par le rapport de la distance permettant d'obtenir deux résonances successives ($\lambda/2$) sur la largeur à mi-hauteur de chaque pic de l'intensité transmise ($\lambda T/2\pi\sqrt{R}$) :

$$\mathcal{F} = \frac{\pi\sqrt{R}}{T} \quad (2.41)$$

Donc pour des miroirs très réfléchissants ($R \approx 1$) : $\mathcal{F} \approx \pi/T$.

Notons que pour un interféromètre de Fabry-Pérot réel, la finesse réelle \mathcal{F}_R peut être calculée au moyen de la finesse d'instrument \mathcal{F}_I qui tient compte des défauts de la cavité et de la finesse \mathcal{F} dite de réflectivité, définie précédemment [112] :

$$\frac{1}{\mathcal{F}_R^2} = \frac{1}{\mathcal{F}^2} + \frac{1}{\mathcal{F}_I^2} \quad (2.42)$$

Facteur de qualité de la cavité

Le facteur de qualité Q exprime l'amortissement des oscillations d'un système résonnant lorsque celui-ci n'est plus excité, il dépend donc du rapport de l'énergie W stockée dans la cavité sur la perte d'énergie ($-dW/dt$) [113] :

$$Q = \omega \frac{W}{-dW/dt} = \omega \frac{W}{TWc/d} = \omega d \frac{d}{Tc} = \frac{2\pi d}{\lambda T} \quad (2.43)$$

Nous voyons donc que plus les miroirs sont réfléchissants (T petit), plus le facteur de qualité est grand, et pour des miroirs très réfléchissants ($R \approx 1$, $T \ll 1$) : $F \approx \pi/T = Q\lambda/2d$.

Intervalle spectral libre de la cavité

L'intervalle spectral libre d'une cavité Fabry-Pérot désigne l'écart en fréquence entre deux pics successifs de sa figure d'interférence. La fréquence $\nu_p = p \frac{c}{2d}$ étant associée à l'ordre d'interférence p , nous avons donc :

$$ISL = \nu_{p+1} - \nu_p = \frac{c}{2d} \quad (2.44)$$

qui représente la bande passante de la cavité.

Notons que pour un interféromètre de Fabry-Pérot réel, le revêtement des miroirs de la cavité peut modifier légèrement la phase de l'onde à chaque réflexion, influant ainsi un peu sur la valeur de l'intervalle spectral libre.



FIGURE 2.21 : *Interféromètre de Fabry-Pérot SA-800 de la marque Burleigh dans son support, avec deux vis de réglage d'orientation, la cavité et une diode qui reliée à un oscilloscope permet d'effectuer les réglages fins.*

Facteur de transmission de la cavité

Le facteur de transmission τ traduit les pertes en énergie de la cavité réelle, c'est donc le rapport de l'intensité maximale de l'onde transmise sur l'intensité de l'onde incidente :

$$\tau = \frac{I_t^{max}}{I_i} = \frac{T^2}{(T + A)^2} \quad (2.45)$$

Les signaux étudiés étant très faibles, pour qu'ils soient détectables à la sortie de l'interféromètre, il faut donc que ce facteur de transmission soit le plus grand possible.

Interféromètre de Fabry-Pérot utilisé

L'interféromètre de Fabry-Pérot qui nous a permis de résoudre les raies d'émission des boîtes quantiques étudiées est un modèle SA-800 de la marque Burleigh, montré sur la figure (2.21). Cet interféromètre étant normalement prévu pour balayer en énergie des raies de laser, il n'est pas très stable. En effet, alors que l'un des miroirs de la cavité est fixe, l'autre est monté sur un déplacement piézoélectrique permettant de faire varier finement la longueur d de la cavité, mais il dérive rapidement avec le temps. Afin d'évaluer cette dérive, nous avons étudié la variation au cours du temps de la tension nécessaire à appliquer au piézoélectrique pour observer la raie d'émission située à 890 nm d'une lampe à Krypton. Nous voyons ainsi sur la figure (2.22.a) la dérive temporelle de la position en énergie du mode du Fabry-Pérot qui est d'environ $0.5 \mu\text{eV}/\text{min}$, ce qui est handicapant pour mesurer des largeurs de raies d'environ $3 \mu\text{eV}$. Nous avons donc été contraints de prendre en compte cette dérive lors du traitement de nos résultats expérimentaux.

La cavité Fabry-Pérot utilisée possède une longueur $d = 2 \text{ cm}$ et les miroirs ont un coefficient de réflexion en énergie de $R = 99.3\%$ aux longueurs d'onde considérées (autour

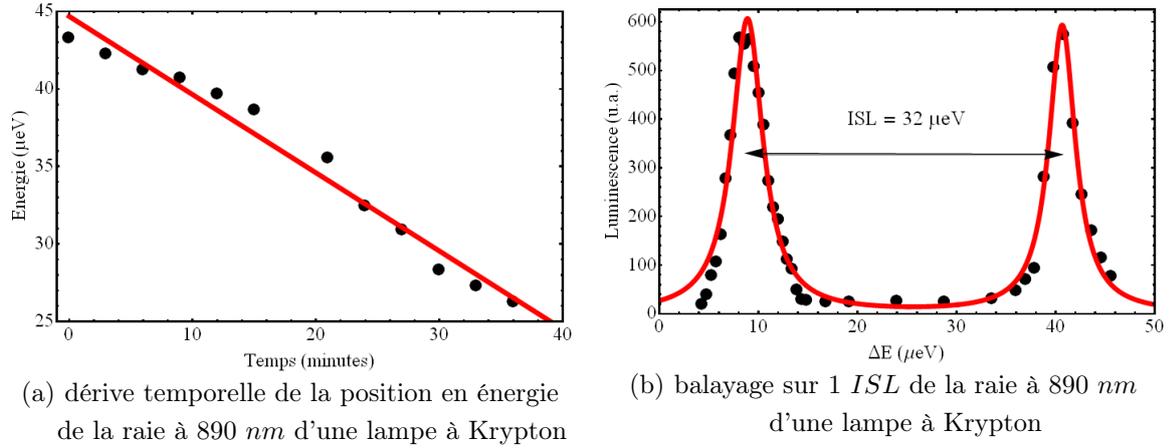


FIGURE 2.22 : Mesures expérimentales (a) de la dérive temporelle de la position en énergie d'un mode de l'interféromètre de Fabry-Pérot et (b) de son intervalle spectral libre.

de 900 nm). La fonction de transmission en énergie :

$$\mathcal{T}(\omega) = \frac{T^2}{T^2 + 4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)} = \frac{(1 - R)^2}{(1 - R)^2 + 4R \sin^2\left(\frac{\omega}{c}d\right)} \quad (2.46)$$

est alors une succession périodique de pics très fins de largeur $\gamma_{FP} = 0.3 \mu eV$ de période $ISL = 32 \mu eV$, ce qui est approximativement la valeur expérimentale obtenue sur la figure (2.22.b) en balayant en longueur d'onde la raie d'émission à 890 nm de la lampe à Krypton sur un peu plus d'un intervalle spectral libre. Ce balayage est illustré par la figure (2.23), en changeant le tension appliquée au miroir de la cavité monté sur un déplacement piézoélectrique, nous faisons défiler les modes de celle-ci et le signal détecté en sortie de l'interféromètre est la convolution du signal incident de densité spectrale $S_i(\omega)$ et de la fonction de transmission de la cavité :

$$\mathcal{T}(\omega_0) \otimes S_i(\omega_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{T}(\omega - \omega_0) S_i(\omega) d\omega \quad (2.47)$$

où ω_0 est la pulsation de résonance de la cavité. En faisant varier la longueur de la cavité, nous en faisons varier la fréquence de résonance et nous sommes alors capables de reconstruire point par point $\mathcal{T}(\omega) \otimes S_i(\omega)$. La connaissance de la fonction de transmission $\mathcal{T}(\omega)$ nous permet alors par déconvolution de remonter au signal incident. En pratique, la largeur des pics de transmission de l'interféromètre étant très inférieure à celle des raies à mesurer, nous assimilons $\mathcal{T}(\omega)$ à un peigne de Dirac, la déconvolution devenant ainsi inutile.

Pour qu'il soit possible de résoudre la largeur d'une raie, il faut par ailleurs que celle-ci soit moins large que l'intervalle spectral libre de la cavité utilisée, pour que le signal détecté ne soit la convolution que d'un seul pic de transmission de la cavité avec la raie spectrale.

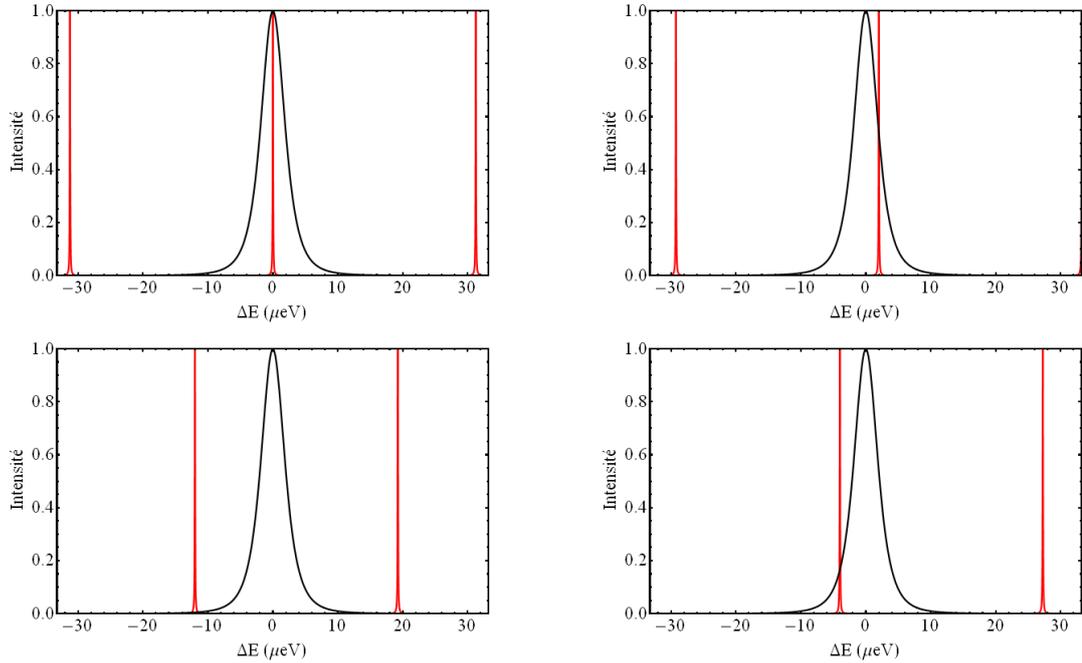


FIGURE 2.23 : *Superposition, en rouge des pics de transmission de l'interféromètre de Fabry-Pérot et en noir du spectre d'une raie lorentzienne de largeur à mi-hauteur $3 \mu\text{eV}$, pour différentes positions du miroir mobile de l'interféromètre de Fabry-Pérot.*

En effet, comme l'illustre la figure (2.24), lorsque la raie à analyser possède une largeur supérieure à l'intervalle spectral libre de la cavité, un balayage en fréquence ne modifie presque pas le signal transmis par celle-ci.

Pour qu'il soit possible de résoudre une raie spectrale au moyen de l'interféromètre de Fabry-Pérot, il faut donc avoir :

$$\gamma_{FP} < \gamma_{raie} < ISL \quad (2.48)$$

ce qui est le cas pour toutes les raies étudiées. En effet, comme nous le verrons dans le quatrième chapitre, le temps de cohérence d'une transition est relié à la largeur homogène de raie par :

$$\gamma_{raie} = \hbar\Delta\omega = \frac{2\hbar}{T_2} \quad (2.49)$$

Pour que nous puissions résoudre une raie spectrale au moyen de notre interféromètre de Fabry-Pérot, il faut donc que le temps de cohérence correspondant soit compris entre 40 ps et 4 ns , ce qui est toujours le cas puisque nous trouvons généralement un temps de cohérence compris entre 200 ps et 600 ps .

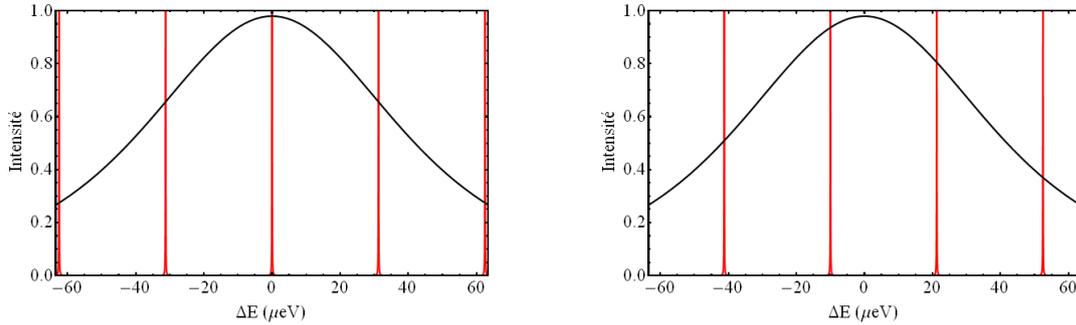


FIGURE 2.24 : *Superposition, en rouge des pics de transmission de l'interféromètre de Fabry-Pérot et en noir du spectre d'une raie lorentzienne de largeur à mi-hauteur $80 \mu\text{eV} > ISL$, pour différentes positions du miroir mobile de l'interféromètre de Fabry-Pérot.*

2.2.6 Cryostat

L'échantillon est inséré dans un cryostat à doigt froid au contact d'un bain d'hélium liquide, permettant d'atteindre une température de 7 K . Ce cryostat, représenté sur la figure (2.25), a été développé au sein du laboratoire [18] pour répondre aux impératifs de notre montage expérimental, à savoir une grande stabilité à l'échelle sub-micrométrique durant plusieurs heures, et la nécessité d'accéder à l'échantillon aussi bien par sa surface gravée que par ses deux faces clivées, dans le but de découpler spatialement les directions d'excitation et de détection.

Afin de nous assurer la meilleure stabilité possible, un cryostat traditionnel à contact avec un bain d'hélium liquide a été retenu. En effet, contrairement aux cryostats à circulation (type "gas-flow") dans lesquels le flux du liquide cryogénique provoque des vibrations, ce type de cryostat est beaucoup plus stable sur la durée et ne nécessite pas de liaison mécanique permanente (canne de transfert) avec la réserve d'hélium liquide, permettant ainsi d'isoler l'ensemble expérimental sur une table optique munie de pieds anti-vibration.

Pour réaliser nos expériences, un cryostat spécifique, représenté sur la figure (2.25), a été utilisé. Il est constitué d'un vase à hélium liquide (de température 4.2 K), entouré d'un vase à azote liquide (de température 77 K), lui même isolé thermiquement de l'extérieur par une chambre à vide, permettant également d'isoler les deux vases entre eux. Un prolongement tubulaire en cuivre du vase à hélium d'un centimètre de diamètre, surnommé "doigt froid", sur lequel vient se fixer un porte échantillon lui aussi en cuivre, descend sur une dizaine de centimètres dans la partie basse du cryostat. Un cache à azote en cuivre, prolongement du vase à azote permet de protéger ce doigt froid et une partie du porte échantillon des rayonnements thermiques extérieurs, tandis que toute la partie basse du cryostat est isolée de l'extérieur par une cuve en verre parallélépipédique de 5 cm de hauteur pour 1.6 cm de largeur, chaque face ayant une épaisseur de 1.8 mm .

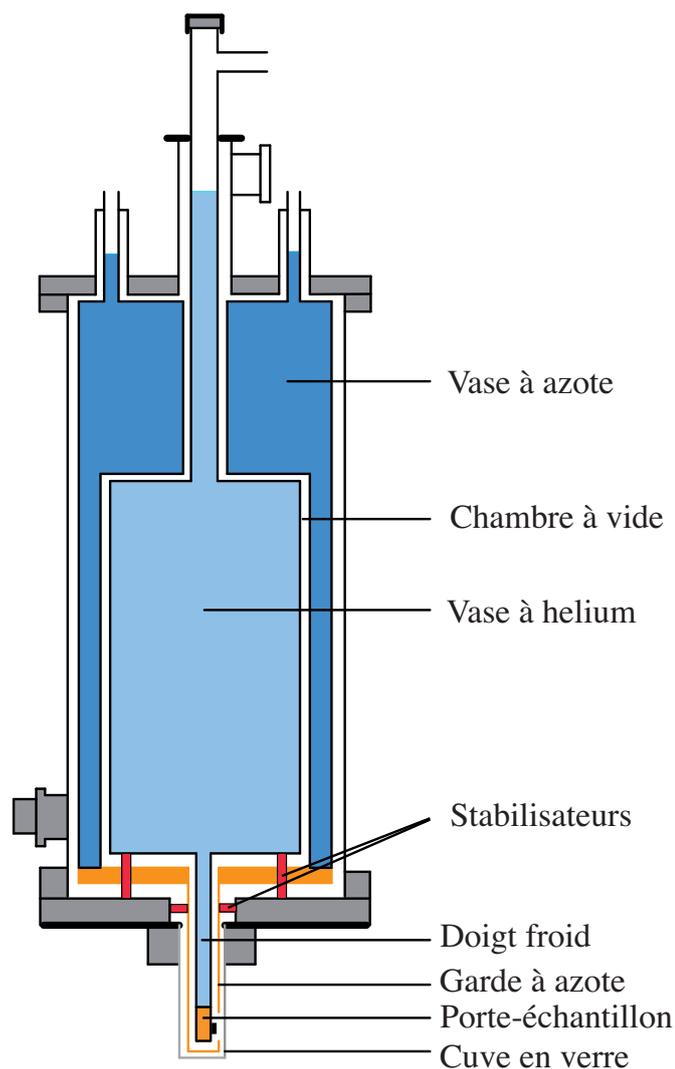


FIGURE 2.25 : Schéma du cryostat à doigt froid.

Afin d'assurer la stabilité de ce cryostat, le vase contenant l'hélium n'est pas fixé de manière rigide au col du cryostat, mais l'est par un élément souple, contenant un soufflet autorisant un débattement vertical de l'ordre de 5 mm et un débattement latéral de l'ordre de 1 mm , du vase par rapport au col. Les effets de la dilatation thermique du vase à hélium sont ainsi compensés par ce soufflet, car le fond du vase repose quant à lui sur trois piliers stabilisateurs fixés de manière rigide sur le fond de l'enceinte extérieure, ne subissant elle pas de dilatation thermique puisqu'elle reste à température ambiante. Trois vis latérales permettent par ailleurs de stabiliser la queue tubulaire du vase à hélium. Ce doigt froid, destiné à recevoir la porte échantillon est ainsi maintenu latéralement par des stabilisateurs de faibles dimensions, qui se dilatent donc peu, tandis que le bas du vase à hélium est maintenu verticalement.

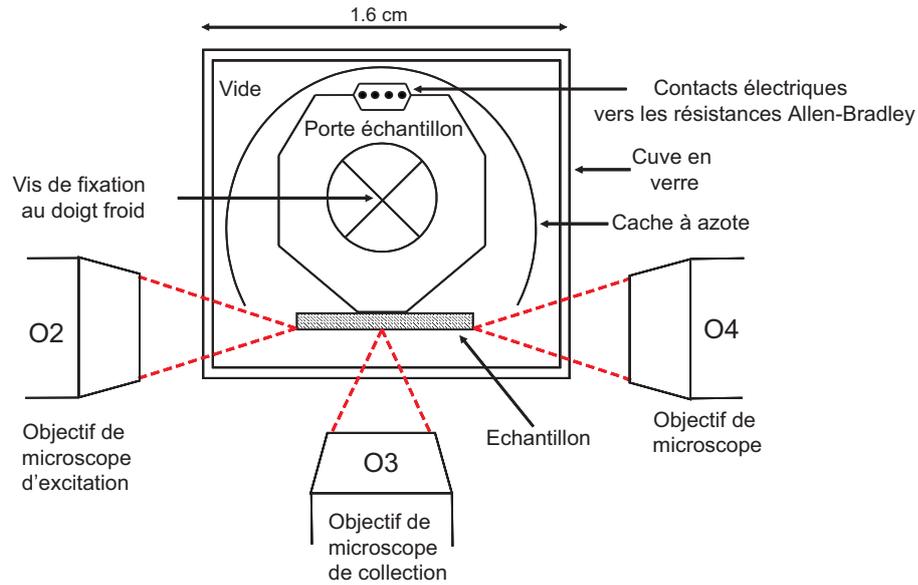


FIGURE 2.26 : Schéma du porte-échantillon et de la partie basse du cryostat.

Pour être inséré dans le cryostat, l'échantillon est fixé sur un porte échantillon en cuivre, schématisé sur la figure (2.26). Celui-ci est constitué d'une partie plane d'environ 1 mm de large, sur laquelle est collé l'échantillon au moyen de laque d'argent, les deux faces clivées de celui-ci étant en retrait du porte échantillon, afin de pouvoir y focaliser le laser pour le coupler à l'un des guides d'onde. Le porte échantillon est vissé en son centre au doigt froid contenant de l'hélium liquide, et est protégé des rayonnements extérieurs par le cache à azote cylindrique, dans lequel est percé un fenêtré permettant d'accéder à la surface de l'échantillon et à ses deux faces clivées. La température minimale ainsi atteinte par l'échantillon est de 7 K . Celle-ci peut être augmentée et contrôlée au moyen de deux résistances Allen-Bradley calibrées, fixées à l'intérieur du porte échantillon. L'une de ces résistances est utilisée pour chauffer l'échantillon lorsqu'une tension de plusieurs volts est appliquée à ces bornes, tandis que la seconde permet d'accéder à la température du porte échantillon, en mesurant sa résistance au moyen d'un ohmmètre, cette dernière ayant été calibrée en fonction de la température. Nous pouvons ainsi modifier la température du système étudié jusqu'à 80 K .

2.2.7 Dispositif Hanbury Brown et Twiss

Afin de faire évoluer notre montage expérimental, et de réaliser des mesures de corrélations de photons et à terme des interférences à deux photons, nous nous sommes récemment équipés de photo-diodes à avalanche (APD) montées en sortie du spectromètre selon une configuration type Hanbury Brown et Twiss (HBT) [114, 115, 116]. Comme le montre la

figure (2.14), au moyen d'un miroir pivotant la luminescence passant par le spectromètre peut être envoyée sur une fente de sortie, derrière laquelle est placée une lentille L_5 permettant d'obtenir un faisceau parallèle. La luminescence arrive ensuite sur un cube séparateur 50/50 non polarisant, envoyant la moitié du signal sur chacune des APD. Les deux photodiodes, d'une résolution temporelle de l'ordre de 300 ps peuvent être utilisées soit pour réaliser des corrélations de photons, soit pour mesurer la décroissance temporelle de la luminescence.

Dans le premier cas, les deux APD sont branchées sur les entrées "START" et "STOP" d'une carte d'acquisition PicoHarp 300 connectée à l'ordinateur. La courbe de corrélations s'obtient alors en enregistrant l'histogramme des temps d'arrivée des photons sur l'une des voies, sachant qu'un photon a déjà été détecté sur l'autre voie. Cela est réalisé au moyen d'un déclenchement conditionné, la détection d'un photon sur la voie "START" déclenchant une horloge qui s'arrête lorsqu'un photon est détecté sur la voie "STOP". Un histogramme est alors construit en reportant le nombre de photons détectés sur la seconde voie en fonction du temps écoulé depuis qu'un premier photon a été détecté sur la première.

Dans le second cas, seule une APD est branchée sur la voie "STOP" de la carte d'acquisition, tandis qu'une photo-diode rapide en silicium, sur laquelle arrive la lumière réfléchie par une lame de verre placée en sortie de laser, assure la synchronisation temporelle du système en étant branchée sur la voie "START" de la carte d'acquisition. Cela permet de mesurer le nombre de photons collectés par la photo-diode à avalanche en fonction du temps écoulé depuis que le laser a été détecté par la photo-diode rapide, et ainsi de réaliser un histogramme construit comme précédemment expliqué. La décroissance temporelle observée permet alors de remonter au temps de vie de l'état excité du système étudié.

Conclusion

Le dispositif expérimental utilisé tout au long de cette thèse a été conçu pour observer l'émission résonnante de boîtes quantiques uniques, en séparant spatialement les directions d'excitation et de détection. Pour ce faire, nous avons choisi de découpler spatialement des directions d'excitation et de détection au moyen de guides d'onde uni-dimensionnels gravés à la surface des échantillons, par la suite placés dans un cryostat à trois axes optiques. Un système confocal, limitant notre champ de détection à un disque de 1 μm de diamètre nous permet par ailleurs l'étude d'objets uniques.

Deux interféromètres agrémentent le montage expérimental de base. Un interféromètre de Fabry-Pérot peut être intercalé sur le chemin de détection de la luminescence, afin d'améliorer la résolution spectrale de notre dispositif et un interféromètre de Michelson stabilisé en phase peut être inséré avant l'échantillon, pour exciter le système au moyen

de deux impulsions successives, séparées d'un délai δ et déphasées l'une par rapport à l'autre d'une quantité ϕ , précisément contrôlée au moyen d'une boucle d'asservissement. Deux photo-diodes à avalanches, permettent par ailleurs des mesures de temps de vie et de corrélations de photons.

Ce dispositif nous permet ainsi, à l'aide d'une impulsion lumineuse résonante, de créer une superposition cohérente de deux états quantiques (réalisation d'un bit quantique) et contrôler celle-ci au moyen d'une seconde impulsion, pendant son temps de cohérence.

Chapitre 3

Interaction matière - rayonnement

Sommaire

3.1	Interaction d'un système à deux niveaux et d'un champ électromagnétique classique	98
3.1.1	Hamiltonien d'interaction $\hat{H}_{int}(t)$	99
3.1.2	Transitions entre les deux niveaux sous l'effet du champ classique, oscillations de Rabi	102
3.2	Formalisme de la matrice densité	107
3.2.1	État pur et mélange statistique	107
3.2.2	Opérateur densité	108
3.2.3	Équation de Liouville - Von Neumann	109
3.3	Équations de Bloch optiques	109
3.3.1	Évolution temporelle de l'état d'un système à deux niveaux soumis à un champ extérieur	109
3.3.2	Approximation séculaire et approximation du champ tournant	111
3.4	Résolution des équations de Bloch	113
3.4.1	Solutions stationnaires	114
3.4.2	Solutions générales à la résonance	115
3.5	Régime impulsionnel	116
3.6	Résultats expérimentaux	121
3.6.1	Oscillations de Rabi en fonction de l'aire des impulsions	121
3.6.2	Résultats expérimentaux	122
3.6.3	Amortissement des oscillations de Rabi	126
3.6.3.a	Relaxation des cohérences	127
3.6.3.b	Relaxation des populations	129
3.6.4	Oscillations de Rabi d'un système à trois niveaux	130
3.6.5	Rôle des phonons dans l'amortissement des oscillations de Rabi.	135

Dans ce troisième chapitre nous nous intéresserons à l'interaction d'un système à deux niveaux avec un champ électromagnétique, résonnant avec la transition entre les niveaux, dont l'observation est rendue possible par la géométrie originale de notre montage. Nous commencerons par rappeler, dans le formalisme du vecteur d'état, l'évolution temporelle d'un tel système, dans le cas d'une excitation résonnante continue et constante dans le temps. Nous introduirons alors le formalisme de la matrice densité et en déduirons les équations de Bloch optiques, qui nous permettront par la suite de tenir compte des mécanismes de décohérence dans l'étude de l'évolution de l'état du système. Après avoir présenté une résolution analytique de ces équations, nous considérerons finalement le cas d'une excitation impulsionnelle, telle que celle que nous utilisons, afin de détailler dans une dernière partie nos résultats expérimentaux. Nous verrons que le système à deux niveaux idéal considéré jusqu'alors ne permet pas de rendre compte fidèlement de nos observations expérimentales. Nous nous attacherons alors à essayer de l'améliorer en considérant, d'une part la présence d'un troisième niveau dû à l'existence d'une structure fine excitonique, et d'autre part l'interaction du système avec les phonons, que nous avons pu étudier en faisant varier la température de l'échantillon.

3.1 Interaction d'un système à deux niveaux et d'un champ électromagnétique classique

Considérons une boîte quantique idéale, pour laquelle seuls deux états propres sont accessibles. Nous définissons d'une part l'état fondamental $|0\rangle$ correspondant à la configuration bande de valence pleine, bande de conduction vide, et d'autre part le premier état excité $|1\rangle$ pour lequel une paire électron-trou a été créée dans la boîte. Notons que le niveau excité $|1\rangle$ a été ainsi choisi, car de tous les états excités de la boîte quantique, il s'agit de celui de plus basse énergie, le moins couplé à son environnement, ce qui comme nous le verrons par la suite est préférable pour limiter toute interaction du système avec le milieu dense environnant. Les deux états ainsi définis ont été schématisés dans la figure (3.1).

Le système à deux niveaux ainsi formé est en interaction avec un rayonnement électromagnétique, traité pour l'instant de manière classique en l'exprimant sous la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_L(\mathbf{r}, t) \cos(\omega_L t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \phi) = \mathbf{E}_L \mathcal{F}(\mathbf{r}) \mathcal{G}(t) \cos(\omega_L t + \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \phi) \quad (3.1)$$

où ω_L , $\mathbf{k} = \mathbf{u}_k 2\pi/\lambda$ et ϕ sont respectivement la pulsation, le vecteur d'onde et la phase de l'onde incidente et où $\mathbf{E}_L = \mathcal{E} E_L$ est le produit de son vecteur polarisation \mathcal{E} et de

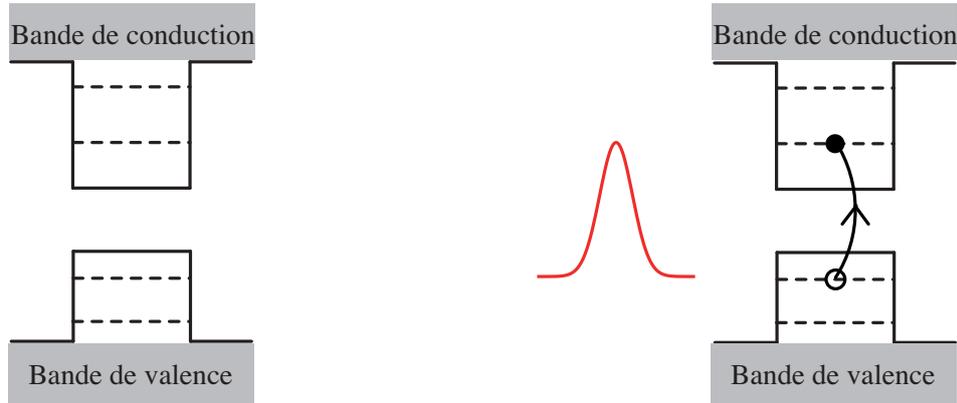


FIGURE 3.1 : Représentation des deux états propres de la boîte quantique considérés. À gauche l'état fondamental $|0\rangle$ et à droite l'état excité $|1\rangle$.

son amplitude E_L (l'indice "L" faisant référence au "laser"). Les fonctions $\mathcal{F}(\mathbf{r})$ et $\mathcal{G}(t)$ permettent quant à elles de tenir compte de la nature de l'onde. $\mathcal{F}(\mathbf{r})$ peut ainsi être égale à 1 pour une onde plane progressive, ou à $1/r$ pour une onde sphérique, tandis que $\mathcal{G}(t)$ peut par exemple être unitaire pour décrire une onde plane progressive ou prendre la forme d'une fonction porte pour décrire une impulsion.

Cette approche, dite "semi-classique", sera suffisante pour décrire la majorité des phénomènes physiques que nous observons. En effet, étant donné que nous utilisons pour rayonnement incident celui d'une source laser, nous pouvons négliger toute influence du système à deux niveaux sur l'amplitude du champ électromagnétique, qu'il est donc inutile de quantifier [59].

3.1.1 Hamiltonien d'interaction $\hat{H}_{int}(t)$

En électromagnétisme classique, les champs électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ et magnétique $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$, ainsi que les densités de charge $\rho(\mathbf{r}, t)$ et de courant $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$, sont tous quatre reliés entre eux par les équations de Maxwell :

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\epsilon_0} \rho(\mathbf{r}, t) \quad (3.2a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (3.2b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \quad (3.2c)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) \quad (3.2d)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide et c la célérité de la lumière. Ces quatre équations couplées à l'expression de la force de Lorentz permettent alors de décrire tous les phénomènes d'électromagnétisme classique.

Dans ce système, les équations (3.2b) et (3.2c) démontrent l'existence d'un potentiel vecteur $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ et d'un potentiel scalaire $U(\mathbf{r}, t)$ permettant de caractériser entièrement le champ électromagnétique au moyen des relations :

$$\begin{cases} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \nabla \wedge \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) - \nabla U(\mathbf{r}, t) \end{cases} \quad (3.3)$$

Remarquons que ces deux équations ne définissent cependant pas de manière univoque les potentiels $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ et $U(\mathbf{r}, t)$, car si à un couple $\{\mathbf{A}(\mathbf{r}, t), U(\mathbf{r}, t)\}$ est bien associé un unique champ électromagnétique $\{\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)\}$, la réciproque est fautive et un même champ $\{\mathbf{E}(\mathbf{r}, t), \mathbf{B}(\mathbf{r}, t)\}$ peut être décrit par une infinité de couples $\{\mathbf{A}(\mathbf{r}, t), U(\mathbf{r}, t)\}$, reliés entre eux par des transformations de jauge. Il est donc possible, pour chaque phénomène physique considéré de choisir la condition de jauge la plus adaptée, dans notre cas celle de Göppert - Mayer [59].

Dans le cadre de notre approche semi-classique, nous considérons un électron, de masse m_e et de charge $q = -e$, dont le mouvement est traité de manière quantique, plongé dans un champ électromagnétique classique, que nous choisirons par simplicité sous la forme d'une onde plane monochromatique telle que :

$$\begin{cases} \mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_L \cos(\omega_L t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \\ \mathbf{B}(t) = \frac{\mathbf{k} \wedge \mathbf{E}_L}{\omega} \cos(\omega_L t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \\ \mathbf{E}_L \cdot \mathbf{k} = 0 \end{cases} \quad (3.4)$$

Supposons que cet électron est de plus soumis à un potentiel $V(\hat{\mathbf{r}})$, sa dynamique peut alors être décrite, comme cela est montré dans [117], par le hamiltonien :

$$\hat{H} = \frac{1}{2m_e} (\hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t))^2 + qU(\hat{\mathbf{r}}, t) + V(\hat{\mathbf{r}}) \quad (3.5)$$

où $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$ est l'opérateur quantité de mouvement et $\hat{\mathbf{r}}$ est l'opérateur position.

Jauge de Coulomb

Plaçons nous pour commencer dans la jauge de Coulomb définie par :

$$\nabla \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (3.6)$$

En considérant l'onde plane progressive (3.4), nous obtenons le couple de potentiels :

$$\begin{cases} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mathbf{E}_L}{\omega} \sin(\omega_L t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}) \\ U(\mathbf{r}, t) = 0 \end{cases} \quad (3.7)$$

et le hamiltonien du système s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \hat{H} &= \frac{1}{2m_e} (\hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t))^2 + V_{coul}(\hat{\mathbf{r}}) \\
 &= \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_e} - \frac{q}{2m_e} (\hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) - \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot \hat{\mathbf{p}}) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)}{2m_e} + V(\hat{\mathbf{r}}) \\
 &= \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_e} - \frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)}{2m_e} + V(\hat{\mathbf{r}})
 \end{aligned} \tag{3.8}$$

Le hamiltonien (3.8) peut donc se mettre sous la forme :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}(t) \tag{3.9}$$

avec :

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_e} + V_{coul}(\hat{\mathbf{r}}) \tag{3.10a}$$

$$\hat{H}_{int}(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)}{2m_e} \tag{3.10b}$$

Approximation des grandes longueurs d'onde

Lorsque les dimensions du système quantique étudié sont très faibles devant la longueur d'onde du rayonnement incident, ce qui est le cas pour nos boîtes quantiques pour lesquelles le rayon de Bohr de l'exciton est une centaine de fois inférieure à la longueur d'onde du laser d'excitation, nous pouvons considérer que le champ extérieur est constant à l'échelle du système et il est possible de remplacer $\mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)$ par $\mathbf{A}_\perp^2(\mathbf{r}_0, t)$ où \mathbf{r}_0 est la position du centre de masse du système. Le hamiltonien d'interaction s'écrit alors :

$$\hat{H}_{int}(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\mathbf{r}_0, t)}{2m_e} \tag{3.11}$$

où les opérateurs position $\hat{\mathbf{r}}$ ne figurent plus et où le second terme étant devenu un scalaire, il ne peut provoquer de transitions entre les deux niveaux du système. L'évolution de celui-ci peut alors être calculée au moyen du hamiltonien :

$$\hat{H}_{int}^{\mathbf{A.p}}(t) = -\frac{q}{m_e} \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t) \tag{3.12}$$

seul à permettre une transition entre $|0\rangle$ et $|1\rangle$.

Jauge de Göppert - Mayer

La jauge de Göppert - Mayer se déduit de celle de Coulomb par transformation de jauge. En se plaçant dans l'approximation des grandes longueurs d'onde et en introduisant le moment dipolaire électrique du système :

$$\hat{\boldsymbol{\mu}} = q(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) \tag{3.13}$$

elle permet de déterminer le hamiltonien d'interaction le plus commode pour l'étude de notre système [59] :

$$\hat{H}'_{int}(t) = -\hat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t) \quad (3.14)$$

Il s'agit du hamiltonien dit "dipolaire électrique".

3.1.2 Transitions entre les deux niveaux sous l'effet du champ classique, oscillations de Rabi

Considérons notre boîte quantique idéale pour laquelle seuls les deux états propres $|0\rangle$ et $|1\rangle$ sont considérés, totalement isolée de son environnement, et négligeons les fluctuations du vide, responsables de l'émission spontanée. L'état du système à l'instant t est une combinaison linéaire de ses deux états propres, et en utilisant le formalisme du vecteur d'état il s'écrit [117] :

$$|\psi(t)\rangle = C_0(t) |0\rangle + C_1(t) |1\rangle \quad (3.15)$$

où les coefficients complexes $C_0(t)$ et $C_1(t)$ vérifient la condition de normalisation $C_0(t)C_0^*(t) + C_1(t)C_1^*(t) = 1$. Les deux états propres $|0\rangle$ et $|1\rangle$ ayant respectivement pour énergie propre E_0 et E_1 , le hamiltonien libre du système à deux niveaux s'écrit sous la forme :

$$\hat{H}_0 = E_0 |0\rangle \langle 0| + E_1 |1\rangle \langle 1| \quad (3.16)$$

Cette boîte est soumise à un rayonnement incident, décrit de manière classique par (3.1), que nous pouvons réécrire dans l'approximation des grandes longueurs d'onde :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_L \mathcal{G}(t) \cos(\omega_L t + \phi) \quad (3.17)$$

Si de plus, pour des raisons de simplicité, nous considérons dans un premier temps uniquement le cas d'une excitation continue par une onde plane progressive d'amplitude E_L , nous pouvons exprimer ce champ sous la forme :

$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_L \cos(\omega_L t + \phi) \quad (3.18)$$

L'interaction entre la boîte et le rayonnement est schématisé figure (3.2).

L'opérateur moment dipolaire $\hat{\boldsymbol{\mu}}$ dépend de l'opérateur position $\hat{\mathbf{r}}$ et celui-ci étant impair, il en va de même pour $\hat{\boldsymbol{\mu}}$ qui, lorsqu'il est appliqué à une fonction d'onde de parité donnée, a donc pour effet de la transformer en une fonction d'onde de parité opposée. De ce fait, ses éléments de matrice diagonaux sont nuls :

$$\langle 0|\hat{\boldsymbol{\mu}}|0\rangle = \langle 1|\hat{\boldsymbol{\mu}}|1\rangle = 0 \quad (3.19)$$

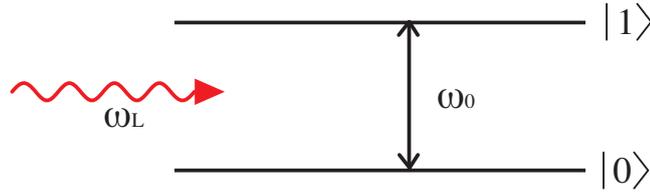


FIGURE 3.2 : Schéma du système à deux niveaux de pulsation de résonance ω_0 , excité par un champ électromagnétique classique de pulsation ω_L .

et il ne reste que ses éléments de matrice non diagonaux :

$$\langle 0|\hat{\mu}|1\rangle = \mu_{01} \quad \text{et} \quad \langle 1|\hat{\mu}|0\rangle = \mu_{10} \quad (3.20)$$

Rappelons que d'après les propriétés générales des produits scalaires, ces deux éléments de matrice sont des éléments conjugués l'un de l'autre, et que par un choix judicieux de la phase de la fonction d'onde, il nous est donc possible de les rendre réels, égaux et positifs et de pouvoir ainsi écrire $\mu_{01} = \mu_{10}^* = \mu_{10}$.

Le hamiltonien d'interaction que nous considérerons prend alors la forme :

$$\hat{H}_{int}(t) = -\hat{\mu} \cdot \mathbf{E}_L \cos(\omega_L t + \phi) (|0\rangle \langle 1| + |1\rangle \langle 0|) \quad (3.21)$$

Nous pouvons dès maintenant introduire la pulsation de Rabi :

$$\Omega_R = \frac{\hat{\mu} \cdot \mathbf{E}_L}{\hbar} \quad (3.22)$$

qui permet de caractériser l'intensité du couplage entre le système à deux niveaux et l'onde incidente. Le hamiltonien d'interaction s'écrit ainsi :

$$\hat{H}_{int}(t) = -\hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) (|0\rangle \langle 1| + |1\rangle \langle 0|) \quad (3.23)$$

Évolution temporelle de l'état du système

L'évolution temporelle de l'état du système à deux niveaux est, dans le formalisme du vecteur d'état que nous utilisons pour l'instant, décrite par l'équation de Schrödinger [60] :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle \quad (3.24)$$

qui appliquée au vecteur d'état (3.15) devient :

$$i\hbar \frac{d}{dt} C_0(t) |0\rangle + i\hbar \frac{d}{dt} C_1(t) |1\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle \quad (3.25)$$

En projetant sur les vecteurs propres $|0\rangle$ et $|1\rangle$, nous obtenons ainsi le système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} i\hbar \dot{C}_0(t) = C_0(t)E_0 - C_1(t)\hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) \\ i\hbar \dot{C}_1(t) = C_1(t)E_1 - C_0(t)\hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) \end{cases} \quad (3.26)$$

qui peut s'écrire sous la forme :

$$\begin{cases} i\hbar\dot{C}_0(t) = C_0(t) E_0 - C_1(t) \hbar\Omega_R \frac{e^{i(\omega_L t + \phi)} + e^{-i(\omega_L t + \phi)}}{2} \\ i\hbar\dot{C}_1(t) = C_1(t) (E_0 + \hbar\omega_0) - C_0(t) \hbar\Omega_R \frac{e^{i(\omega_L t + \phi)} + e^{-i(\omega_L t + \phi)}}{2} \end{cases} \quad (3.27)$$

où $\omega_0 = (E_1 - E_0)/\hbar$ est la pulsation de Bohr de la transition entre les deux niveaux du système.

Commençons par remarquer qu'en l'absence d'onde optique ($\Omega_R = 0$), nous obtenons deux équations différentielles découplées, qui se résolvent facilement pour donner :

$$\begin{cases} C_0(t) = C_0(0)e^{-iE_0 t/\hbar} \\ C_1(t) = C_1(0)e^{-iE_1 t/\hbar} = C_1(0)e^{-iE_0 t/\hbar} e^{-i\omega_0 t} \end{cases} \quad (3.28)$$

Nous devinons donc que l'effet résonnant de l'onde ($\omega_L = \omega_0$) doit être dû au terme en $e^{i(\omega_L t + \phi)}$ dans la première équation du système (3.27) et au terme en $e^{-i(\omega_L t + \phi)}$ dans la seconde. En réécrivant le système sous la forme :

$$\begin{cases} i\hbar\dot{C}_0(t) = C_0(t) E_0 - C_1(t) \hbar\frac{\Omega_R}{2} e^{i(\omega_L t + \phi)} (1 + e^{-2i(\omega_L t + \phi)}) \\ i\hbar\dot{C}_1(t) = C_1(t) (E_0 + \hbar\omega_0) - C_0(t) \hbar\frac{\Omega_R}{2} e^{-i(\omega_L t + \phi)} (1 + e^{2i(\omega_L t + \phi)}) \end{cases} \quad (3.29)$$

nous pouvons alors faire l'approximation séculaire qui consiste à négliger les termes en $e^{\pm 2i(\omega_L t + \phi)}$. Une justification détaillée de cette approximation pourra être trouvée dans [118].

En effectuant le changement de variables :

$$\begin{cases} \mathfrak{C}_0(t) = C_0(t)e^{iE_0 t/\hbar} \\ \mathfrak{C}_1(t) = C_1(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{i(\omega_L t + \phi)} \end{cases} \quad (3.30)$$

nous passons dans la représentation dite "tournante" [118] et en dérivant temporellement ces nouvelles variables :

$$\begin{cases} \dot{\mathfrak{C}}_0(t) = \dot{C}_0(t)e^{iE_0 t/\hbar} + i\frac{E_0}{\hbar}\mathfrak{C}_0(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_1(t) = \dot{C}_1(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{-i(\omega_L t + \phi)} + i\left(\frac{E_0}{\hbar} + \omega_L\right)\mathfrak{C}_1(t) \end{cases} \quad (3.31)$$

nous pouvons, en tenant compte de l'approximation séculaire, réécrire le système (3.29) sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{\mathfrak{C}}_0(t) = i\frac{\Omega_R}{2}\mathfrak{C}_1(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_1(t) = i\delta_L\mathfrak{C}_1(t) + i\frac{\Omega_R}{2}\mathfrak{C}_0(t) \end{cases} \quad (3.32)$$

où le terme $\delta_L = \omega_L - \omega_0$, parfois désigné par le terme anglo-saxon "detuning", est le désaccord entre la fréquence ω_L de l'onde incidente et la fréquence propre $\omega_0 = (E_1 - E_0)/\hbar$ de la transition. Par ailleurs, notons que la condition de normalisation $C_0(t)C_0^*(t) + C_1(t)C_1^*(t) = 1$ étant vérifiée, la condition $\mathfrak{C}_0(t)\mathfrak{C}_0^*(t) + \mathfrak{C}_1(t)\mathfrak{C}_1^*(t) = 1$ l'est également.

Le système différentiel couplé (3.32) se résout en dérivant par exemple la seconde équation par rapport au temps, et en remplaçant dans la dérivée obtenue le terme $\dot{\mathfrak{C}}_0(t)$ par la première équation :

$$\ddot{\mathfrak{C}}_1(t) = i \delta_L \dot{\mathfrak{C}}_1(t) + i \frac{\Omega_R}{2} \dot{\mathfrak{C}}_0(t) = i \delta_L \dot{\mathfrak{C}}_1(t) - \frac{\Omega_R^2}{4} \mathfrak{C}_1(t) \quad (3.33)$$

$\mathfrak{C}_1(t)$ est donc solution de l'équation différentielle du second ordre à coefficients constants :

$$\ddot{\mathfrak{C}}_1(t) - i \delta_L \dot{\mathfrak{C}}_1(t) + \frac{\Omega_R^2}{4} \mathfrak{C}_1(t) = 0 \quad (3.34)$$

Il faut pour la résoudre déterminer les racines r_{\pm} de l'équation caractéristique associée :

$$r^2 - i \delta_L r + \frac{\Omega_R^2}{4} = 0 \quad (3.35)$$

qui sont :

$$r_{\pm} = i \frac{\delta_L}{2} \pm i \frac{\sqrt{\Omega_R^2 + \delta_L^2}}{2} \quad (3.36)$$

En posant $\Omega = \sqrt{\Omega_R^2 + \delta_L^2}$, la pulsation de Rabi généralisée, nous obtenons donc :

$$\mathfrak{C}_1(t) = A e^{r_+ t} + B e^{r_- t} = \left(A e^{i\Omega t/2} + B e^{-i\Omega t/2} \right) e^{i\delta_L t/2} \quad (3.37)$$

où les constantes A et B peuvent être déterminées à partir des conditions initiales. Si nous considérons le système initialement dans son état fondamental $|0\rangle$ ces conditions s'écrivent :

$$\begin{cases} \mathfrak{C}_0(0) = 1 \\ \mathfrak{C}_1(0) = 0 \end{cases} \quad (3.38)$$

soit en remplaçant la première équation par son expression dans (3.32) :

$$\begin{cases} -i \frac{2}{\Omega_R} \dot{\mathfrak{C}}_1(0) - \frac{2\delta_L}{\Omega_R} \mathfrak{C}_1(0) = 1 \\ \mathfrak{C}_1(0) = 0 \end{cases} \quad (3.39)$$

La seconde de ces conditions nous donne la relation $A = -B$ qui nous permet de réécrire la solution (3.37) sous la forme :

$$\mathfrak{C}_1(t) = 2i A \sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) e^{i\delta_L t/2} \quad (3.40)$$

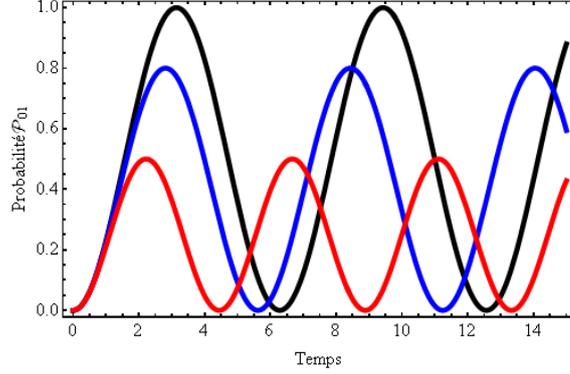


FIGURE 3.3 : Oscillation de Rabi pour une excitation exactement résonnante en noir, pour un déréglage de $\Omega_R/2$ en bleu et de Ω_R en rouge

En utilisant alors la première condition, nous pouvons déterminer la constante $A = \Omega_R/2\Omega$ et obtenir comme solution générale de l'équation différentielle (3.33) :

$$\mathfrak{C}_1(t) = i \frac{\Omega_R}{\Omega} \sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) e^{i\delta_L t/2} \quad (3.41)$$

D'après la seconde équation du système (3.32) nous en déduisons le coefficient $\mathfrak{C}_0(t)$:

$$\begin{aligned} \mathfrak{C}_0(t) &= -i \frac{2}{\Omega_R} (\dot{\mathfrak{C}}_1(t) - i \delta_L \mathfrak{C}_1(t)) \\ &= -i \frac{2}{\Omega_R} \left(i \frac{\Omega_R}{2} \cos\left(\frac{\Omega}{2}t\right) + \frac{\Omega_R \delta_L}{2\Omega} \sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \right) e^{i\delta_L t/2} \\ &= \left(\cos\left(\frac{\Omega}{2}t\right) - i \frac{\delta_L}{\Omega} \sin\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \right) e^{i\delta_L t/2} \end{aligned} \quad (3.42)$$

qui vérifie bien la condition de normalisation :

$$\begin{aligned} \mathfrak{C}_0(t)\mathfrak{C}_0^*(t) + \mathfrak{C}_1(t)\mathfrak{C}_1^*(t) &= \cos^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) + \frac{\delta_L^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) + \frac{\Omega_R^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \\ &= \cos^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) + \frac{\delta_L^2 + \Omega_R^2}{\Omega^2} \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) = 1 \end{aligned} \quad (3.43)$$

puisque $\Omega = \sqrt{\Omega_R^2 + \delta_L^2}$.

Il est surtout intéressant d'exprimer la probabilité $\mathcal{P}_{01}(t) = C_1(t)C_1^*(t) = \mathfrak{C}_1(t)\mathfrak{C}_1^*(t)$ pour que le système initialement dans son état fondamental $|0\rangle$ soit dans son état excité $|1\rangle$ à l'instant t :

$$\mathcal{P}_{01}(t) = \left(\frac{\Omega_R}{\Omega} \right)^2 \sin^2\left(\frac{\Omega}{2}t\right) \quad (3.44)$$

Cette probabilité oscille donc avec le temps à la pulsation Ω , on parle alors d'oscillation de Rabi (qui fut le premier à vérifier expérimentalement cet effet [119]) [120]. Lorsque

l'excitation est résonnante avec la transition entre les niveaux ($\delta_L = 0$), l'amplitude de cette oscillation, qui s'effectue alors à la pulsation de Rabi ($\Omega = \Omega_R$), est maximale. Sur la figure (3.3), nous avons tracé l'évolution temporelle de cette probabilité, dans le cas exactement résonnant en noir, et pour des désaccord de $\delta_L = \Omega_R/2$ en bleu et $\delta_L = \Omega_R$ en rouge. Nous voyons que l'amplitude tout comme la période de l'oscillation de Rabi diminue lorsque le detuning augmente et il n'est possible qu'à detuning nul de mettre le système dans l'état excité avec une probabilité de 1.

3.2 Formalisme de la matrice densité

Le formalisme du vecteur d'état que nous venons d'utiliser est mal adapté aux situations où les interactions entre le système à deux niveaux et son environnement sont trop importantes pour être négligées, ce qui est le cas pour les boîtes quantiques étudiées, situées dans un milieu semi-conducteur. En effet, dans ce cas, il n'existe pas de vecteur d'état capable de décrire le système à deux niveaux seul, mais seulement un vecteur d'état global, produit tensoriel des états relatifs à chaque élément de l'environnement prenant part aux interactions qui les ont corrélés entre eux. Il convient alors pour plus de simplicité de préférer le formalisme de la matrice densité, qui permet de décrire l'évolution du système à la suite des interactions, à condition de ne pas s'intéresser aux corrélations qui apparaissent alors entre le système et les différents paramètres de son environnement [121].

Dans le cadre de notre étude, nous ne sommes pas capables d'identifier tous les processus en interaction avec notre système et ne pouvons que constater leur effet moyen. Nous aurons donc recours à l'opérateur densité $\hat{\rho}$, plutôt qu'au vecteur d'état, pour décrire l'état du système [60, 122].

3.2.1 État pur et mélange statistique

Considérons un système quantique décrit par le hamiltonien \hat{H} . Son état $|\phi\rangle$ est dit "pur" s'il peut être mis sous la forme :

$$|\phi\rangle = \sum_n C_n |\phi_n\rangle \quad (3.45)$$

où l'ensemble $\{|\phi_n\rangle\}$ désigne les états propres d'un ensemble complet d'observables qui commutent et où les nombres complexes C_n sont les coefficients de développement de l'état pur $|\phi\rangle$ sur la base des états $\{|\phi_n\rangle\}$. La valeur moyenne d'une grandeur physique observable A dans cet état pur est donnée par :

$$\langle A \rangle = \langle \phi | A | \phi \rangle = \sum_{n,m} C_n^* C_m \langle \phi_n | A | \phi_m \rangle \quad (3.46)$$

Seulement, les grandeurs physiques mesurables sont généralement macroscopiques, et un état macroscopique ne correspond pas à un état microscopique bien défini, mais à la donnée d'un ensemble d'états microscopiques $\{|\psi_i\rangle\}$, à chacun desquels est associée une probabilité d'occurrence \mathcal{P}_i , telle que soit vérifiée la condition de normalisation :

$$\sum_i \mathcal{P}_i = 1 \quad (3.47)$$

Un état macroscopique est de fait désigné par le terme de "mélange statistique". La valeur moyenne d'une grandeur physique observable A dans cet état macroscopique est donnée par :

$$\langle A \rangle = \sum_i \mathcal{P}_i \langle \psi_i | A | \psi_i \rangle \quad (3.48)$$

3.2.2 Opérateur densité

Les états $\{|\psi_i\rangle\}$ du mélange statistique se décomposent sur la base orthonormée $\{|\phi_n\rangle\}$ en :

$$|\psi_i\rangle = \sum_n C_{ni} |\phi_n\rangle \quad (3.49)$$

où l'ensemble $\{|\phi_n\rangle\}$ désigne les états propres d'un ensemble complet d'observables qui commutent, les nombres complexes C_{ni} les coefficients de développement de l'état $|\psi_i\rangle$ sur la base $\{|\phi_n\rangle\}$. La valeur moyenne de l'observable A dans l'état $|\psi_i\rangle$ s'écrit ainsi :

$$\langle A \rangle = \sum_i \mathcal{P}_i \sum_{n,m} C_{ni}^* C_{mi} \langle \phi_n | A | \phi_m \rangle \quad (3.50)$$

L'opérateur densité $\hat{\rho}$ se définit alors comme :

$$\hat{\rho} = \sum_i \mathcal{P}_i |\psi_i\rangle \langle \psi_i| \quad (3.51)$$

qui est un opérateur hermitique et ses éléments de matrice sur la base orthonormée $\{|\phi_n\rangle\}$ sont de la forme :

$$\rho_{mn} = \langle \phi_n | \hat{\rho} | \phi_m \rangle = \sum_i \mathcal{P}_i C_{ni}^* C_{mi} \quad (3.52)$$

La valeur moyenne de l'observable A dans l'état $|\psi_i\rangle$ devient :

$$\langle A \rangle = \sum_{n,m} \langle \phi_m | \hat{\rho} | \phi_n \rangle \langle \phi_n | A | \phi_m \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho} A) \quad (3.53)$$

Signalons par ailleurs la condition de normalisation :

$$\text{Tr}(\hat{\rho}) = \sum_n \langle \phi_n | \hat{\rho} | \phi_n \rangle = \sum_i \mathcal{P}_i \sum_n C_{ni}^* C_{ni} = \sum_i \mathcal{P}_i = 1 \quad (3.54)$$

Les éléments diagonaux $\rho_{nn} = \langle \phi_n | \hat{\rho} | \phi_n \rangle = \sum_i \mathcal{P}_i |C_{ni}|^2$ représentent la probabilité moyenne de trouver le système dans l'état $|\phi_n\rangle$ et sont donc désignés par le terme "populations". Les éléments non diagonaux ρ_{mn} sont quant à eux désignés par le terme de "cohérences" car ils prennent en compte la phase relative entre les composantes des deux états $|\phi_m\rangle$ et $|\phi_n\rangle$.

3.2.3 Équation de Liouville - Von Neumann

Chacun des états $|\psi_i\rangle$ d'un mélange statistique évolue selon l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi_i(t)\rangle = \hat{H} |\psi_i(t)\rangle \quad (3.55)$$

d'où :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) &= i\hbar \sum_i \mathcal{P}_i \left(\frac{d}{dt} |\psi_i(t)\rangle \langle \psi_i(t)| + |\psi_i(t)\rangle \frac{d}{dt} \langle \psi_i(t)| \right) \\ &= \sum_i \mathcal{P}_i \left(\hat{H} |\psi_i(t)\rangle \langle \psi_i(t)| + |\psi_i(t)\rangle \langle \psi_i(t)| \hat{H} \right) \end{aligned} \quad (3.56)$$

Nous obtenons ainsi l'équation de Liouville - Von Neumann décrivant l'évolution temporelle de l'opérateur densité [123, 124] :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [\hat{H}, \rho(t)] \quad (3.57)$$

Notons que cette expression a été obtenue en considérant un système totalement isolé. En réalité se produisent de brèves mais nombreuses interactions entre le système et son environnement, l'effet moyen de celles-ci pouvant être décrit en ajoutant au deuxième membre de l'équation de Liouville (3.57) un opérateur relaxation :

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax} \quad (3.58)$$

dont nous donnerons l'expression par la suite.

3.3 Équations de Bloch optiques

3.3.1 Évolution temporelle de l'état d'un système à deux niveaux soumis à un champ extérieur

En négligeant pour l'instant les processus de relaxation, dûs par exemple aux fluctuations du vide ou à l'interaction du système avec son environnement, l'évolution d'un

système à deux niveaux soumis à un rayonnement incident est donnée par l'équation de Liouville (3.57), où \hat{H} est le hamiltonien du système donné par (3.9) avec :

$$\hat{H}_0 = \begin{pmatrix} E_1 & 0 \\ 0 & E_0 \end{pmatrix} \quad (3.59)$$

et

$$\hat{H}_{int}(t) = \begin{pmatrix} 0 & -\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) \\ -\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) & 0 \end{pmatrix} \quad (3.60)$$

$\rho(t)$ est la matrice densité du système à deux niveaux, que nous écrirons :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(t) & \sigma_{10}(t) \\ \sigma_{01}(t) & \sigma_{00}(t) \end{pmatrix} \quad (3.61)$$

Le calcul du commutateur $[\hat{H}, \rho(t)]$ s'effectue aisément et en posant $\hbar\omega_0 = E_1 - E_0$, nous trouvons :

$$[\hat{H}, \rho(t)] = \begin{pmatrix} -\hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{01} - \sigma_{10}) & \hbar\omega_0\sigma_{10} - \hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{00} - \sigma_{11}) \\ -\hbar\omega_0\sigma_{01} - \hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{11} - \sigma_{00}) & -\hbar\Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{10} - \sigma_{01}) \end{pmatrix} \quad (3.62)$$

Nous obtenons ainsi un système d'équations différentielles, les équations de Bloch optiques, qui décrivent l'évolution temporelle de l'état d'un système à deux niveaux soumis à une excitation électromagnétique classique :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = i \omega_0 \sigma_{01}(t) + i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = -i \omega_0 \sigma_{10}(t) - i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi)(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \end{cases} \quad (3.63)$$

où Ω_R est la pulsation de Rabi et où la condition de normalisation de la matrice densité $\dot{\sigma}_{11} - \dot{\sigma}_{00} = 0$ est bien vérifiée.

Pour avoir une description plus pertinente du phénomène physique que nous observons dans la réalité, il nous faut cependant également tenir compte des processus de relaxation, que nous pouvons introduire de manière phénoménologique au moyen de la matrice de relaxation :

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax} = \begin{pmatrix} -\frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} & -\frac{\sigma_{10}(t)}{T_2} \\ -\frac{\sigma_{01}(t)}{T_2} & -\frac{\sigma_{00}(t)}{T_1} \end{pmatrix} \quad (3.64)$$

Celle-ci nous permet de présenter les deux temps de relaxation T_1 et T_2 du système, qui sont respectivement le temps de vie de l'état excité, qui correspond à la durée moyenne de recombinaison radiative de la paire électron-trou, et le temps de cohérence, qui représente la

durée de relaxation des termes de cohérence de l'opérateur densité. L'équation d'évolution à considérer prend alors la forme :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [\hat{H}, \rho(t)] + i\hbar \left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{relax} \quad (3.65)$$

et les équations de Bloch optiques deviennent :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) (\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = i \omega_0 \sigma_{01}(t) + i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = -i \omega_0 \sigma_{10}(t) - i \Omega_R \cos(\omega_L t + \phi) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.66)$$

Rappelons que nous négligeons toute modification de l'émission spontanée par le rayonnement incident, approximation valable si le couplage entre le système à deux niveaux et le rayonnement est négligeable durant le temps de corrélation des fluctuations du vide (responsables de l'émission spontanée) [59], ce qui est le cas si $\Omega_R \ll \omega_0$, condition par ailleurs nécessaire à l'approximation consistant à ne tenir compte que des deux niveaux $|0\rangle$ et $|1\rangle$. Remarquons de plus que pour pouvoir se limiter à ces deux niveaux, il faut également être dans une situation de quasi-résonance, nécessitant que $|\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0$.

3.3.2 Approximation séculaire et approximation du champ tournant

Pour résoudre les équations de Bloch (3.66), nous devons nous placer dans le cadre de l'approximation du champ tournant ainsi que dans celui de l'approximation séculaire, déjà évoquées précédemment.

Commençons par réécrire l'opérateur moment dipolaire :

$$\hat{\boldsymbol{\mu}} = \boldsymbol{\mu}_{01} (|1\rangle \langle 0| + |0\rangle \langle 1|) \quad (3.67)$$

sous la forme :

$$\hat{\boldsymbol{\mu}} = \boldsymbol{\mu}_{01} (\hat{\mathcal{S}}_+ + \hat{\mathcal{S}}_-) \quad (3.68)$$

où les opérateurs $\hat{\mathcal{S}}_+ = |1\rangle \langle 0|$ et $\hat{\mathcal{S}}_- = |0\rangle \langle 1|$ font respectivement passer le système de l'état $|0\rangle$ à l'état $|1\rangle$ et inversement. Le hamiltonien d'interaction entre le système à deux niveaux et le champ incident s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \hat{H}_{int} &= -\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} = -\boldsymbol{\mu}_{01} \cdot \mathbf{E}_L (\hat{\mathcal{S}}_+ + \hat{\mathcal{S}}_-) \cos(\omega_L t + \phi) \\ &= \frac{\hbar \Omega_R}{2} (\hat{\mathcal{S}}_+ e^{-i(\omega_L t + \phi)} + \hat{\mathcal{S}}_- e^{i(\omega_L t + \phi)} + \hat{\mathcal{S}}_- e^{-i(\omega_L t + \phi)} + \hat{\mathcal{S}}_+ e^{i(\omega_L t + \phi)}) \end{aligned} \quad (3.69)$$

où les termes $e^{\mp i(\omega_L t + \phi)}$ sont respectivement associés à l'absorption et à l'émission d'un photon par le système à deux niveaux.

Le premier terme de la parenthèse décrit donc le passage du système de l'état $|0\rangle$ à l'état $|1\rangle$, associé à l'absorption d'un photon, tandis que le second décrit le passage du système de l'état $|1\rangle$ à l'état $|0\rangle$, associé à l'émission d'un photon. Ces processus sont résonnants au voisinage de $\omega = \omega_0$ et sont beaucoup plus importants que les processus non résonnants associés aux deux derniers termes, correspondant au passage du système de l'état $|1\rangle$ à l'état $|0\rangle$ avec absorption d'un photon et au passage du système de l'état $|0\rangle$ à l'état $|1\rangle$ avec émission d'un photon. Ces deux derniers termes seront donc négligés par la suite, ce qui constitue l'approximation du champ tournant [117]. Dans le cadre de cette approximation, la première équation de Bloch peut s'écrire sous la forme :

$$\dot{\sigma}_{11}(t) = -i \frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{10}(t)e^{i(\omega_L t + \phi)} - \sigma_{01}(t)e^{-i(\omega_L t + \phi)}) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \quad (3.70)$$

qui en faisant le changement de variables :

$$\begin{cases} \hat{\sigma}_{01}(t) = \sigma_{01}(t) e^{-i(\omega_L t + \phi)} \\ \hat{\sigma}_{10}(t) = \sigma_{10}(t) e^{i(\omega_L t + \phi)} \end{cases} \quad (3.71)$$

devient :

$$\dot{\sigma}_{11}(t) = -i \frac{\Omega_R}{2} (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \quad (3.72)$$

Par ailleurs, en reportant le changement de variables (3.71) dans les deux dernières équations de Bloch, nous obtenons :

$$\begin{cases} \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = i(\omega_0 - \omega_L) \hat{\sigma}_{01}(t) + i \Omega_R \frac{1 + e^{-2i(\omega_L t + \phi)}}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -i(\omega_0 - \omega_L) \hat{\sigma}_{10}(t) - i \Omega_R \frac{1 + e^{2i(\omega_L t + \phi)}}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.73)$$

où, d'après l'approximation séculaire, nous pouvons négliger les termes en $e^{\pm 2i(\omega_L t + \phi)}$.

Le système d'équations différentielles décrivant l'évolution temporelle du système à deux niveaux soumis à un champ électrique de la forme (3.18) s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i \frac{\Omega_R}{2} (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -i \delta_L \hat{\sigma}_{01}(t) + i \frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = i \delta_L \hat{\sigma}_{10}(t) - i \frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.74)$$

où $\delta_L = \omega_L - \omega_0$ est le "detuning".

Notons que dans ce système d'équations, les populations $\sigma_{11}(t)$ et $\sigma_{00}(t)$ ne peuvent pas être séparées des cohérences $\hat{\sigma}_{01}(t)$ et $\hat{\sigma}_{10}(t)$ et ne peuvent de ce fait pas être interprétées directement en termes de taux de transition entre les deux niveaux du système. Les populations et les cohérences sont, dans ces équations, liées entre elles par les termes en $\Omega_R = \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_L / \hbar$ et la différence de phase entre l'oscillation du moment dipolaire moyen et l'onde incidente détermine donc si le système va absorber ou émettre un photon.

3.4 Résolution des équations de Bloch

Pour résoudre les équations de Bloch optiques, introduisons trois nouvelles variables :

$$\begin{cases} u(t) = \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ v(t) = \frac{1}{2i} (\hat{\sigma}_{01}(t) - \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ w(t) = \frac{1}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \end{cases} \quad (3.75)$$

qui sont les trois composantes du vecteur de Bloch [125]. En les dérivant par rapport au temps, nous trouvons :

$$\begin{cases} \dot{u}(t) = -i \frac{\delta_L}{2} (\hat{\sigma}_{01}(t) - \hat{\sigma}_{10}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t)}{2T_2} \\ \dot{v}(t) = -\frac{\delta_L}{2} (\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t)) + \frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\hat{\sigma}_{01}(t) - \hat{\sigma}_{10}(t)}{2iT_2} \\ \dot{w}(t) = -i \frac{\Omega_R}{2} (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \end{cases} \quad (3.76)$$

ce qui nous permet, en tenant compte de la condition de normalisation $\sigma_{00} + \sigma_{11} = 1$, de réécrire les équations de Bloch sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{u}(t) = \delta_L v(t) - \frac{u(t)}{T_2} \\ \dot{v}(t) = -\delta_L u(t) + \Omega_R w(t) - \frac{v(t)}{T_2} \\ \dot{w}(t) = -\Omega_R v(t) - \frac{w(t) + 1/2}{T_1} \end{cases} \quad (3.77)$$

La signification physique de la troisième variable, $w(t)$ est assez évidente, elle représente la moitié de la différence entre la population de l'état excité, et celle de l'état fondamental, et nous voyons qu'en l'absence d'excitation ($\Omega_R = 0$), sa valeur tend vers 1/2 au bout

d'une durée T_1 , le temps de vie du système. Pour interpréter les deux autres variables, $u(t)$ et $v(t)$, calculons la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire de la transition :

$$\begin{aligned}
\langle \boldsymbol{\mu} \rangle &= \text{Tr}(\rho \boldsymbol{\mu}) = \boldsymbol{\mu}_{01} (\sigma_{01} + \sigma_{10}) \\
&= \boldsymbol{\mu}_{01} (\hat{\sigma}_{01} e^{i(\omega_L t + \phi)} + \hat{\sigma}_{10} e^{-i(\omega_L t + \phi)}) \\
&= \boldsymbol{\mu}_{01} \left[(u(t) + iv(t)) e^{i(\omega_L t + \phi)} + (u(t) - iv(t)) e^{-i(\omega_L t + \phi)} \right] \\
&= 2\boldsymbol{\mu}_{01} [u(t) \cos(\omega_L t + \phi) - v(t) \sin(\omega_L t + \phi)]
\end{aligned} \tag{3.78}$$

Ce résultat, qui peut se mettre sous la forme plus explicite :

$$\langle \boldsymbol{\mu} \rangle = 2\boldsymbol{\mu}_{01} \left[u(t) \cos(\omega_L t + \phi) + v(t) \cos(\omega_L t + \phi + \frac{\pi}{2}) \right] \tag{3.79}$$

nous montre que les nouvelles variables $u(t)$ et $v(t)$ sont proportionnelles aux composantes du moment dipolaire moyen, respectivement en phase et en quadrature de phase avec le champ incident.

3.4.1 Solutions stationnaires

La recherche des solutions stationnaires u_S , v_S et w_S des équations de Bloch consiste en la résolution du système de trois équations à trois inconnues :

$$\begin{cases} \delta_L v_S - \frac{u_S}{T_2} = 0 \\ \delta_L u_S - \Omega_R w_S + \frac{v_S}{T_2} = 0 \\ \Omega_R v_S + \frac{w_S + 1/2}{T_1} = 0 \end{cases} \tag{3.80}$$

qui se résout facilement en exprimant, dans la première équation $u(t)$ en fonction de $v(t)$, dans la dernière équation $w(t)$ en fonction de $v(t)$, et en remplaçant dans l'équation du milieu ces deux variables par les deux expressions obtenues :

$$\begin{cases} u_S = T_2 \delta_L v_S \\ (T_2 \delta_L^2 + T_1 \Omega_R^2 + \frac{1}{T_2}) v_S + \frac{\Omega_R}{2} = 0 \\ w_S = -T_1 \Omega_R v_S - \frac{1}{2} \end{cases} \tag{3.81}$$

ce qui nous permet de trouver les solutions stationnaires des équations de Bloch :

$$\begin{cases} u_S = -\frac{1}{2} \frac{T_2^2 \delta_L \Omega_R}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \\ v_S = -\frac{1}{2} \frac{T_2 \Omega_R}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \\ w_S = -\frac{1}{2} \frac{\delta_L^2 T_2^2 + 1}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \end{cases} \tag{3.82}$$

Comme les variables $u(t)$ et $v(t)$ sont des combinaisons des termes $\hat{\sigma}_{01}(t) = \sigma_{01}(t) e^{-i(\omega_L t + \phi)}$ et $\hat{\sigma}_{10}(t) = \sigma_{10}(t) e^{i(\omega_L t + \phi)}$, les solutions stationnaires u_S et v_S signifient seulement que l'oscillation du moment dipolaire moyen possède une amplitude constante au cours du temps. Par ailleurs lorsque Ω_R est grand, les solutions u_S et v_S tendent vers zéro, ce qui indique qu'aux très fortes intensités, le dipôle moyen est nul. La solution stationnaire w_S traduit quant à elle une différence de population constante dans le temps et si nous cherchons uniquement l'expression de la population stationnaire de l'état excité, nous avons $\sigma_{11}^S = w_S + 1/2$, soit :

$$\sigma_{11}^S = \frac{1}{2} \frac{\Omega_R^2 T_1 T_2}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \quad (3.83)$$

qui tend vers $1/2$ lorsque Ω_R est grand. Une excitation intense égalise donc la population des deux niveaux et la transition est dite "saturée". En posant alors

$$s = \frac{\Omega_R^2 T_1 T_2}{\delta_L^2 T_2^2 + 1} \quad (3.84)$$

le paramètre de saturation, nous pouvons écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} u_S = -\frac{1}{2} \frac{\delta_L T_2}{\Omega_R T_1} \frac{s}{s+1} \\ v_S = -\frac{1}{2} \frac{1}{\Omega_R T_1} \frac{s}{s+1} \\ w_S = -\frac{1}{2} \frac{1}{s+1} \end{array} \right. \quad (3.85)$$

et

$$\sigma_{11}^S = \frac{1}{2} \frac{s}{s+1} \quad (3.86)$$

Ces solutions stationnaires représentent des solutions particulières des équations de Bloch et nous seront utiles pour calculer les solutions générales qui sont la somme de solutions transitoires et de ces solutions stationnaires.

3.4.2 Solutions générales à la résonance

Le calcul des solutions générales des équations de Bloch pour un système à deux niveaux initialement dans son état fondamental et soumis à un rayonnement incident intense, continu et résonnant avec la transition entre les niveaux est effectué dans l'Annexe D. Nous trouvons ainsi l'évolution temporelle des composantes du vecteur de Bloch :

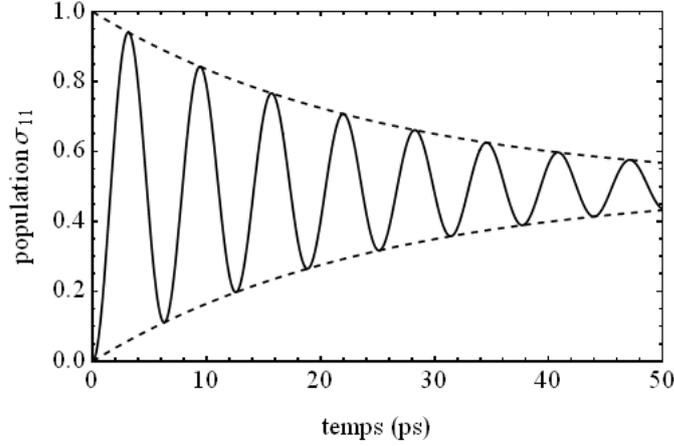


FIGURE 3.4 : Population du niveau excité (trait plein) en fonction du temps, pour une excitation résonante, avec $w_S = 0$, $T_1 = T_2 = 100$ ps et $\Omega_R = 1$ rad.s⁻¹.

$$\begin{cases} u(t) = 0 \\ v(t) = v_S - \left[v_S \cos(\Omega t) + \frac{1}{\Omega} \left(\gamma v_S + \frac{\Omega_R}{2} \right) \sin(\Omega t) \right] e^{-\gamma t} \\ w(t) = w_S - (w_S + \frac{1}{2}) \left[\cos(\Omega t) + \frac{\gamma}{\Omega} \sin(\Omega t) \right] e^{-\gamma t} \end{cases} \quad (3.87)$$

À partir de l'expression (3.87) de $w(t)$, nous pouvons alors déterminer l'évolution temporelle de la population $\sigma_{11}(t)$ de l'état excité :

$$w(t) = \frac{1}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) = \frac{1}{2}[\sigma_{11}(t) - (1 - \sigma_{11}(t))] = \sigma_{11}(t) - \frac{1}{2} \quad (3.88)$$

d'où :

$$\sigma_{11}(t) = (w_S + \frac{1}{2}) \left(1 - (\cos(\Omega t) + \frac{\gamma}{\Omega} \sin(\Omega t)) e^{-\gamma t} \right) \quad (3.89)$$

La figure (3.4) illustre cette évolution, pour $w_S = 0$, $T_1 = T_2 = 100$ ps et $\Omega_R = 1$ rad.s⁻¹ (paramètres choisis arbitrairement tels que l'amortissement $\gamma = 1/25$ et $\Omega_R \gg 1/T_1, 1/T_2$). Nous voyons que les oscillations s'amortissent, faisant tendre à long délai la population de l'état excité vers 1/2, l'enveloppe de cet amortissement étant donnée par la moyenne entre le taux d'amortissement des populations $1/T_1$ et celui des cohérences $1/T_2$.

3.5 Régime impulsif

Dans ce qui précède, nous avons considéré le cas d'une excitation continue de la forme (3.18). Dans nos expériences, elle est cependant effectuée au moyen d'impulsions de durée τ de l'ordre de quelques picosecondes, remplissant la condition $\tau \ll T_1, T_2$ définissant

le régime d'impulsions courtes. Notons que comme les solutions transitoires oscillantes s'amortissent dans le temps avec une durée caractéristique :

$$\gamma = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right) \quad (3.90)$$

la double condition du régime d'impulsions courtes peut s'exprimer sous la forme :

$$\gamma\tau \ll 1 \quad (3.91)$$

Dans ce cas de figure, la relaxation des populations et des cohérences peut être négligée durant l'interaction lumière-matière et l'évolution du système entre les instants $t = 0$ et $t = \tau$ est donnée par :

$$\begin{cases} \dot{u}(t) = \delta_L v(t) \\ \dot{v}(t) = -\delta_L u(t) + \Omega_R w(t) \\ \dot{w}(t) = -\Omega_R v(t) \end{cases} \quad (3.92)$$

Dans la pratique expérimentale, lorsque la durée τ des impulsions est trop courte, il est difficile de réaliser des impulsions carrées et l'amplitude du champ électrique varie au cours de l'impulsion [118]. Nous considérons donc le cas général d'un champ $\mathbf{E}(t)$ variant avec le temps.

Si la relaxation des populations et des cohérences est négligeable durant l'impulsion, l'évolution du système entre les instants $t = 0$ et $t = \tau$ est donnée par (3.92), qui à la résonance ($\delta_L = 0$) nous donne :

$$\dot{u}(t) = 0 \quad (3.93)$$

d'où, en tenant compte de la condition initiale $u(0) = 0$:

$$u(t) = \text{constante} = u(0) = 0 \quad (3.94)$$

Or, en l'absence d'amortissement, nous savons que le module du vecteur de Bloch :

$$u^2(t) + v^2(t) + w^2(t) = v^2(t) + w^2(t) \quad (3.95)$$

est constant, d'où :

$$v^2(t) + w^2(t) = v^2(0) + w^2(0) = 0^2 + \left(\frac{1}{2}\right)^2 = \frac{1}{4} \quad (3.96)$$

Il est donc possible de définir un angle $\theta(t)$ tel que :

$$\begin{cases} v(t) = -\frac{1}{2} \sin(\theta(t)) \\ w(t) = -\frac{1}{2} \cos(\theta(t)) \end{cases} \quad (3.97)$$

que nous pouvons relier à la pulsation de Rabi $\Omega_R(t)$, qui tout comme le champ électrique varie ici au cours de l'impulsion. Pour ce faire, dérivons les deux équations (3.97) par rapport au temps :

$$\begin{cases} \dot{v}(t) = -\frac{1}{2} \dot{\theta}(t) \cos(\theta(t)) \\ \dot{w}(t) = \frac{1}{2} \dot{\theta}(t) \sin(\theta(t)) \end{cases} \quad (3.98)$$

et utilisons les équations de Bloch (3.77) pour obtenir :

$$\begin{cases} \frac{1}{2} \dot{\theta}(t) \cos(\theta(t)) = \frac{\Omega_R(t)}{2} \cos(\theta(t)) \\ \frac{1}{2} \dot{\theta}(t) \sin(\theta(t)) = \frac{\Omega_R(t)}{2} \sin(\theta(t)) \end{cases} \quad (3.99)$$

d'où :

$$\dot{\theta}(t) = \Omega_R(t) = \frac{\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t)}{\hbar} \quad (3.100)$$

En intégrant sur la durée de l'impulsion, nous obtenons θ_L qui représente ce que l'on appelle "l'aire" de l'impulsion [126] :

$$\theta_L = \int_0^\tau \Omega_R(t) dt = \int_0^\tau \frac{\boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}(t)}{\hbar} dt = \frac{\boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}}}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{G}(t) dt \quad (3.101)$$

où nous avons repris la définition du champ (3.1) et où, le champ électrique étant nul hors de l'impulsion, nous avons étendu les bornes d'intégration à l'infini. À la fin de l'impulsion, l'état du système est donc donné par :

$$\begin{cases} v(\tau) = -\frac{1}{2} \sin(\theta_L) \\ w(\tau) = -\frac{1}{2} \cos(\theta_L) \end{cases} \quad (3.102)$$

et ne dépend que de l'aire θ_L de l'impulsion, et non de la forme exacte de l'interaction transitoire subie durant l'impulsion.

Nous voyons que :

- si $\theta_L = \pi/2$, la demi différence de population $w(\tau)$ est nulle, c'est à dire que les populations des deux états sont égales, tandis que la composante quadratique $v(\tau)$ du moment dipolaire prend sa valeur extrême $-1/2$,
- si $\theta_L = \pi$, $w(\tau)$ est prend sa valeur maximale $1/2$, opposée à sa valeur initiale $-1/2$, c'est à dire qu'il y a eu inversion de population, tandis que $v(\tau)$ est nulle,
- si $\theta_L = 2\pi$, $w(\tau)$, tout comme $v(\tau)$, reprennent leur valeur initiale, comme si le système n'avait pas interagit.

Les impulsions d'une aire donnée peuvent donc, quelle que soit leur forme, être utilisées pour déterminer les durées de relaxations T_1 et T_2 .

Des impulsions $\pi/2$ et π peuvent ainsi être utilisées pour mesurer respectivement les durées de relaxations T_2 de $v(t)$ et T_1 de $w(t)$, ce que ne permet pas de faire l'observation de l'amortissement des oscillations de Rabi en régime continu, dépendant de la moyenne γ de ces durées. En effet, au cours de l'interaction lumière-matière, l'onde électromagnétique mélange par les termes en Ω_R les variables $v(t)$ et $w(t)$, tandis que lorsque cette interaction cesse ($\Omega_R = 0$), ce qui est le cas à la fin d'une impulsion, chaque variable évolue séparément et il est alors possible de mesurer le temps de relaxation de chacune.

Ainsi, après une première impulsion $\pi/2$, la polarisation $v(\tau)$ qui a pris sa valeur maximale, décroît avec la constante de temps T_2 . Une seconde impulsion interagissant avec le système au bout d'une durée δ après la première permettra alors de mesurer $v(\tau + \delta)$ et en renouvelant l'opération pour différentes valeurs de δ de déterminer T_2 . De même, après une première impulsion π , la demi différence de population $w(\tau)$ qui a pris sa valeur maximale, décroît avec la constante de temps T_1 et une seconde impulsion interagissant avec le système au bout d'une durée δ après la première permettra alors de mesurer $w(\tau + \delta)$ et en renouvelant l'opération pour différentes valeurs de δ de déterminer T_1 .

Impulsions sécantes hyperboliques

Les impulsions picoseconde que nous utilisons au cours de nos expériences sont en général modélisées par des sécantes hyperboliques [127] de hauteur E_L et de largeur approximative $\pi\tau$:

$$\mathcal{G}(t) = E_L \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau}\right) \quad (3.103)$$

Pour connaître l'état du système à chaque instant t de l'impulsion, nous devons calculer la valeur de $\theta(t)$:

$$\begin{aligned} \theta(t) &= \frac{\mu \cdot \mathcal{E}}{\hbar} \int_{-\infty}^t \mathcal{G}(t') dt' = \frac{\mu \cdot \mathcal{E}}{\hbar} E_L \int_{-\infty}^t \operatorname{sech}\left(\frac{t'}{\tau}\right) dt' \\ &= \frac{\mu \cdot \mathcal{E}}{\hbar} E_L \int_{-\infty}^t 2\tau \frac{d}{dt'} \left(\arctan\left(\tanh\left(\frac{t'}{2\tau}\right)\right) \right) dt' \\ &= 2\tau \frac{\mu \cdot \mathcal{E}}{\hbar} E_L \left[\arctan\left(\tanh\left(\frac{t}{2\tau}\right)\right) + \frac{\pi}{4} \right] \end{aligned} \quad (3.104)$$

L'aire totale de la sécante hyperbolique est donc bien $\pi\tau$ et celle de l'impulsion est :

$$\theta_L = \theta(+\infty) = \tau \frac{\mu \cdot \mathcal{E}}{\hbar} E_L \pi \quad (3.105)$$

Nous pouvons donc réécrire l'évolution dans le temps de $\theta(t)$ sous la forme :

$$\theta(t) = \frac{2}{\pi} \theta_L \left[\frac{\pi}{4} - \arctan\left(\tanh\left(\frac{t}{\tau}\right)\right) \right] \quad (3.106)$$

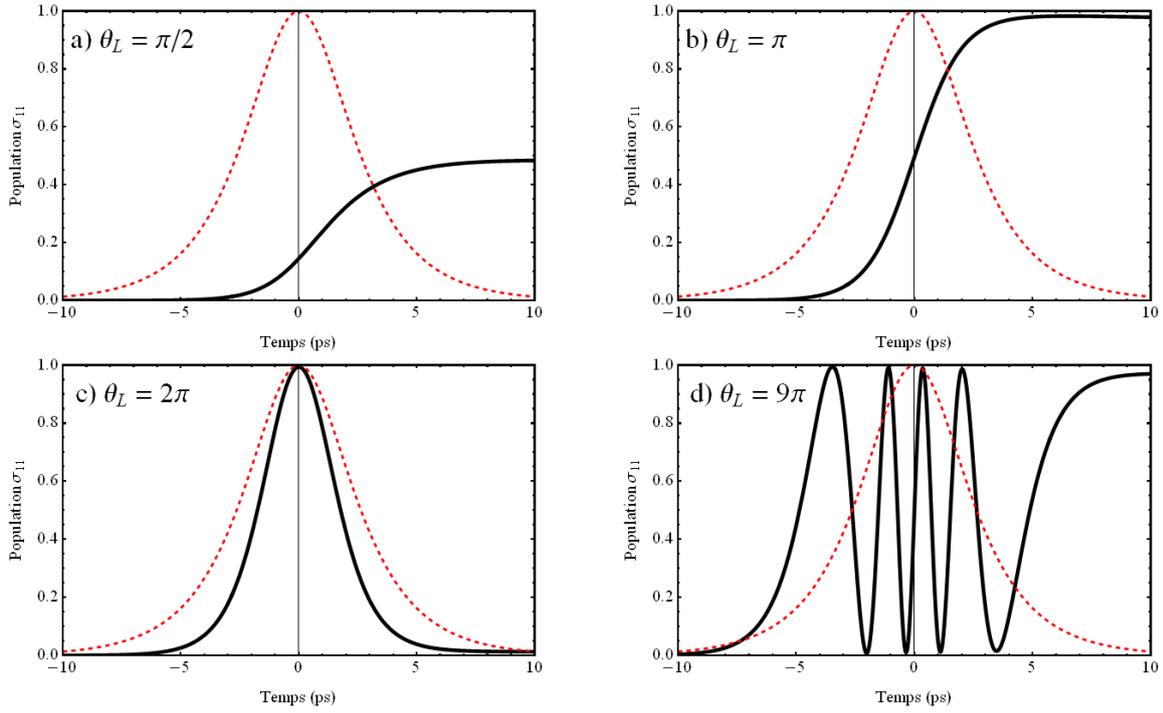


FIGURE 3.5 : Exemples d'oscillations de Rabi en régime impulsionnel avec une impulsion d'aire (a) $\theta_L = \pi/2$, (b) $\theta_L = \pi$, (c) $\theta_L = 2\pi$ et (d) $\theta_L = 9\pi$. En noir figure l'évolution de la population σ_{11} de l'état excité et en pointillés rouges est représentée l'impulsion laser normalisée.

L'évolution du système au cours de l'impulsion est alors donnée par le système (3.97), à partir duquel en utilisant la relation (3.88), nous pouvons établir l'équation d'évolution de la population σ_{11} de l'état excité au cours de l'impulsion :

$$\sigma_{11}(t) = -\frac{1}{2} \cos(\theta(t)) - \frac{1}{2} = \sin^2\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) \quad (3.107)$$

D'après (3.106) elle dépend donc de l'aire totale de l'impulsion et peut s'exprimer sous la forme :

$$\sigma_{11}(t, \theta_L) = \sin^2\left(\frac{\theta_L}{\pi} \left[\frac{\pi}{4} - \arctan\left(\tanh\left(\frac{t}{\tau}\right)\right)\right]\right) \quad (3.108)$$

Sur la figure (3.5) est ainsi représentée l'évolution de la population au cours de l'interaction lumière-matière, pour des impulsions d'aire $\theta_L = \pi/2$, $\theta_L = \pi$, $\theta_L = 2\pi$ et $\theta_L = 9\pi$, représentées par une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 4 ps dont nous faisons varier l'intensité afin de modifier θ_L . Nous voyons ainsi comment une impulsion d'aire π ou 9π prépare le système dans l'état $|1\rangle$, tandis qu'une impulsion d'aire 2π remet celui-ci dans son état initial $|0\rangle$, comme si aucune interaction n'avait eu lieu.

3.6 Résultats expérimentaux

3.6.1 Oscillations de Rabi en fonction de l'aire des impulsions

Nos mesures expérimentales sont réalisées au moyen d'impulsions lumineuses d'une durée $\tau = 2 \text{ ps}$, issues d'un laser Titane-Saphir avec un taux de répétition de 82 MHz . L'état du système est considéré comme étant initialement :

$$\rho(t = 0^-) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (3.109)$$

où 0^- désigne l'instant précédant l'arrivée de l'impulsion, tandis que 0^+ désigne la fin de l'interaction lumière-matière. Durant cette interaction de courte durée du système avec l'impulsion, il est possible de négliger les processus de relaxation et la population $\sigma_{11}(t, \theta_L)$ de l'état excité évolue avec le temps selon l'équation (3.107). À l'issue de celle-ci, le système a été "préparé" dans un état décrit par la matrice densité :

$$\rho(t = 0^+) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(0^+, \theta_L) & \sigma_{10}(0^+, \theta_L) \\ \sigma_{01}(0^+, \theta_L) & \sigma_{00}(0^+, \theta_L) \end{pmatrix} \quad (3.110)$$

La population $\sigma_{11}(0^+, \theta_L)$ de l'état excité relaxe par la suite avec une constante de temps T_1 et l'oscillation dipolaire avec une constante de temps T_2 . Nous aurons donc à l'instant t après l'impulsion :

$$\sigma_{11}(t, \theta_L) = \sigma_{11}(0^+, \theta_L) e^{-t/T_1} \quad (3.111)$$

Pour accéder aux propriétés électroniques d'une boîte quantique, nous réalisons des spectres de photoluminescence sur lesquels nous mesurons l'intensité I de la raie d'émission de la transition fondamentale de la boîte, proportionnelle à l'intégrale temporelle de la population σ_{11} de l'état excité. À un facteur de normalisation près, nous avons ainsi :

$$I(\theta_L) = \int_0^\infty \sigma_{11}(t, \theta_L) dt = \int_{0^-}^{0^+} \sigma_{11}(t, \theta_L) dt + \sigma_{11}(0^+, \theta_L) \int_{0^+}^\infty e^{-t/T_1} dt \quad (3.112)$$

où le premier terme est négligeable devant le second, d'où l'expression :

$$I(\theta_L) = \sigma_{11}(0^+, \theta_L) T_1 = T_1 \sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right) \quad (3.113)$$

L'oscillation de la population $\sigma_{11}(\theta_L)$ en fonction de l'aire θ_L de l'impulsion se traduit donc par une oscillation de l'intensité de la luminescence $I(\theta_L)$, mesurée sur chaque spectre, comme l'illustre la figure (3.6). Nous sommes donc capables en changeant θ_L et en mesurant à chaque fois $I(\theta_L)$ de réaliser une courbe d'oscillation de Rabi, comme celle représentée sur la figure (3.6.g), où nous avons reporté l'intégrale de la population de l'état excité (c'est à dire l'aire en bleu sur les figures (a), (b), (c), (d), (e) et (f)) en fonction de l'aire de l'impulsion (respectivement $\pi/2$, π , $3\pi/2$, 2π , $5\pi/2$ et 3π). Signalons que ce type de

courbe en fonction de l'aire de l'impulsion est parfois désigné par le terme de "rotation de Rabi" afin de le distinguer des "vraies" oscillations de Rabi qui sont elles en fonction du temps.

3.6.2 Résultats expérimentaux

La réalisation d'un grand nombre d'expériences nécessite la maîtrise de l'aire θ_L des impulsions interagissant avec le système à deux niveaux. Or, ainsi que le montre l'expression (3.105), cette aire dépend du produit scalaire $\mu \cdot \mathcal{E}$, qui tout en restant constant au cours de l'expérience peut varier d'une boîte à l'autre, de la durée $\tau = 2 \text{ ps}$ de l'impulsion et de l'amplitude E_L du champ électrique incident, qui est le seul paramètre que nous pouvons faire varier expérimentalement. Cette amplitude étant proportionnelle à la racine carrée de la puissance, nous en déduisons :

$$\theta_L \propto E_L \propto \sqrt{\mathcal{P}} \quad (3.114)$$

Nous ignorons cependant le coefficient de proportionnalité entre les deux paramètres, il nous faut donc établir une correspondance entre la puissance d'excitation et l'état du système.

Comme l'intensité de la luminescence $I(\theta)$ varie sinusoïdalement en fonction de l'aire θ_L de l'impulsion, et donc en fonction de la racine carrée de la puissance, il est possible en changeant la puissance d'excitation et en mesurant pour chaque puissance l'intensité de la raie de luminescence, de tracer la courbe d'oscillations de Rabi de l'intensité $I(\sqrt{\mathcal{P}})$, qui nous permettra de relier de façon univoque la valeur \mathcal{P} de la puissance mesurée en un point du dispositif et l'aire θ_L de l'impulsion en interaction avec la boîte considérée.

Ainsi, nous avons tracé figure (3.7) l'intensité de la raie d'émission de trois boîtes quantiques excitées à la résonance en fonction de la racine carrée de la puissance de l'onde incidente. Afin de réaliser ces courbes, nous avons pour chaque point expérimental modifié la puissance d'excitation et intégré pendant dix secondes la luminescence détectée par la caméra CCD. Sur la figure (3.8) sont représentés les spectres obtenus pour des puissances d'excitation mesurée de $9 \mu W$, $40 \mu W$, $90 \mu W$ et $150 \mu W$. Ces puissances, comme nous pouvons le voir sur la courbe d'oscillation de Rabi de la figure (3.7.a) correspondent respectivement à des impulsions d'aire $\theta_L = \pi$, $\theta_L = 2\pi$, $\theta_L = 3\pi$ et $\theta_L = 4\pi$. En effet, le premier spectre correspond au premier maximum d'intensité, le second au premier minimum, le troisième à un second maximum et le dernier à un second minimum. Si normalement les impulsions d'aire 2π et 4π doivent normalement annuler la luminescence des boîtes, c'est en réalité rarement le cas, comme nous l'expliquerons dans la section suivante sur l'amortissement des oscillations de Rabi. Nous comprenons donc comment une courbe d'oscillations de

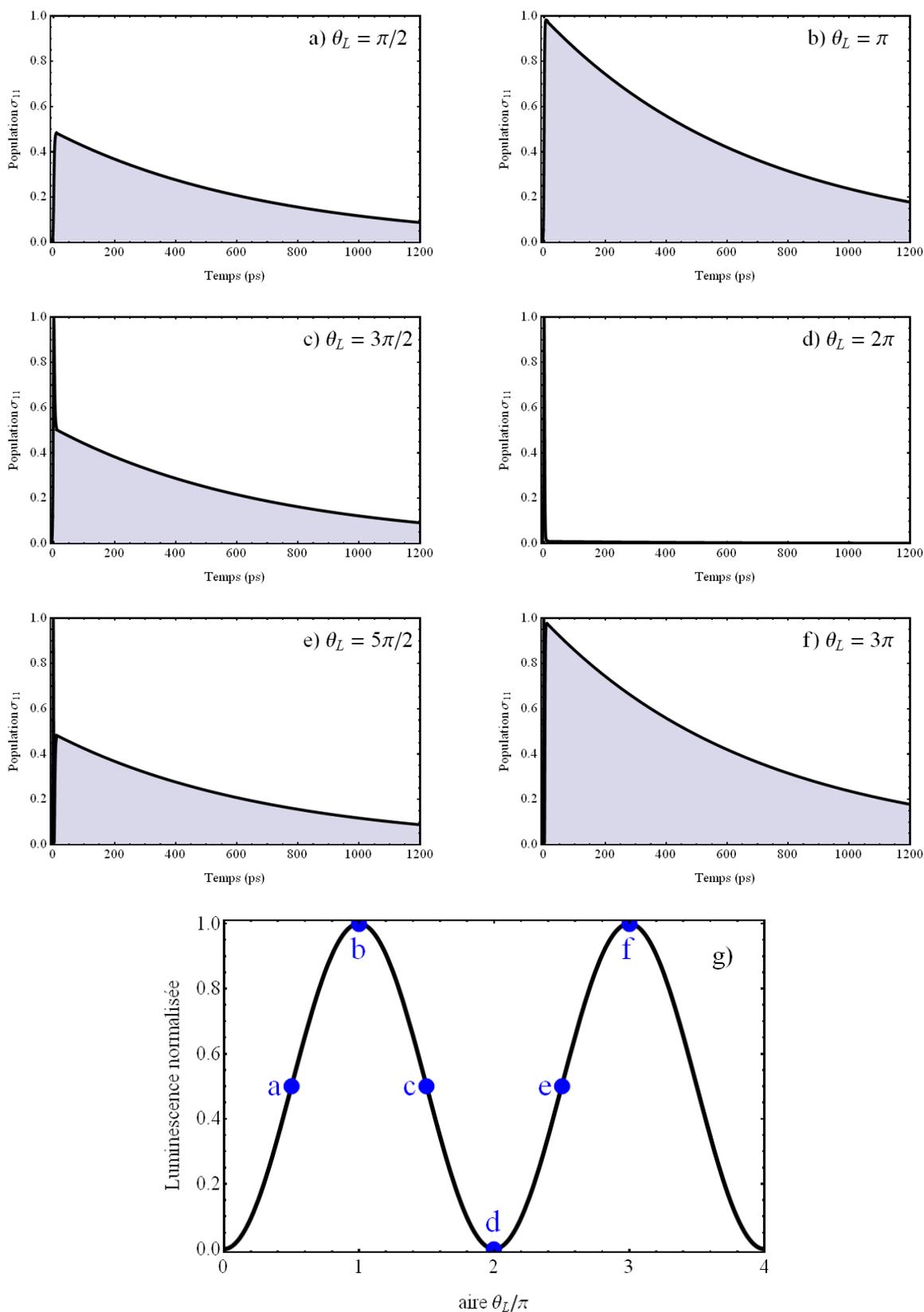


FIGURE 3.6 : Simulations représentant la population du niveau excité en fonction du temps (traits pleins noirs) pour des impulsions d'aire (a) $\pi/2$, (b) π , (c) $3\pi/2$, (d) 2π , (e) $5\pi/2$, (f) 3π . Sur la figure (g) est reportée la luminescence, correspondant à l'aire en bleu sous les courbes (a) à (f), en fonction de l'aire de l'impulsion θ_L/π , un point bleu représentant chacune des six situations précédentes.

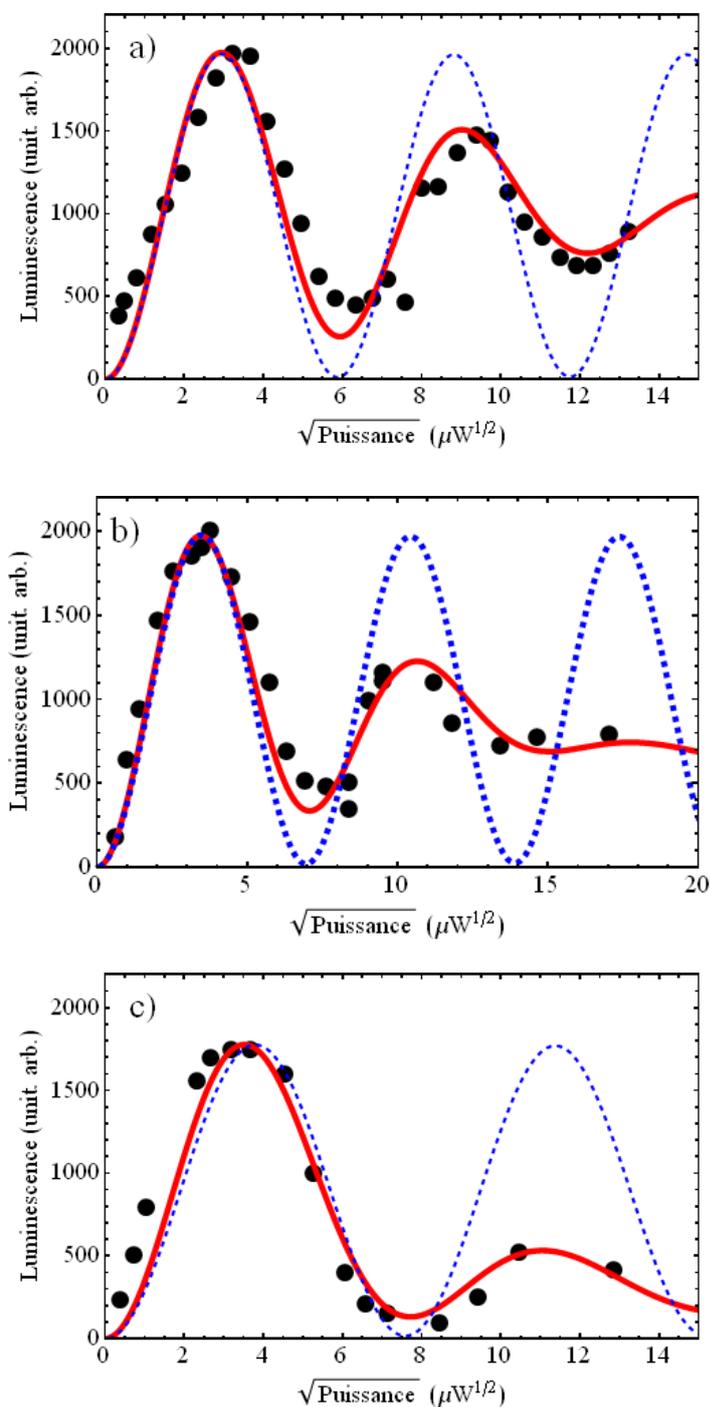


FIGURE 3.7 : *Oscillations de Rabi : photoluminescence de trois boîtes quantiques sous excitation résonnante en fonction de la racine carrée de la puissance de l'onde incidente. L'ajustement numérique tracé en bleu a été réalisé au moyen des équations de Bloch optiques et celui tracé en rouge au moyen des mêmes équations, mais considérant une relaxation supplémentaire (a) des cohérences uniquement, (b) et (c) des cohérences et des populations.*

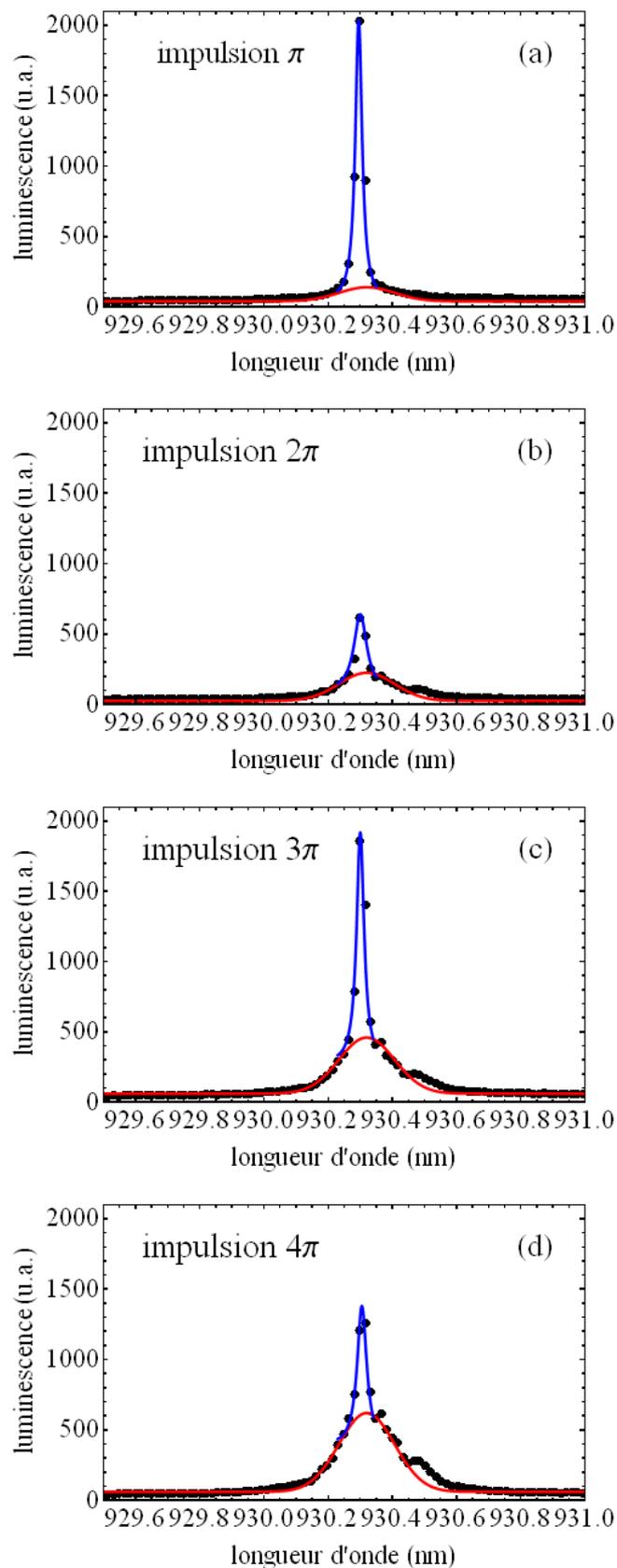


FIGURE 3.8 : Spectres de photoluminescence d'une boîte quantique sous excitation résonnante, réalisés pour différentes puissances de l'onde incidente, respectivement $9 \mu\text{W}$, $40 \mu\text{W}$, $90 \mu\text{W}$ et $150 \mu\text{W}$. En rouge le laser diffusé est ajusté par une gaussienne, tandis qu'en bleu le pic de luminescence de la boîte est ajusté par une lorentzienne. Ces spectres correspondent à l'oscillation (a) de la figure (3.7).

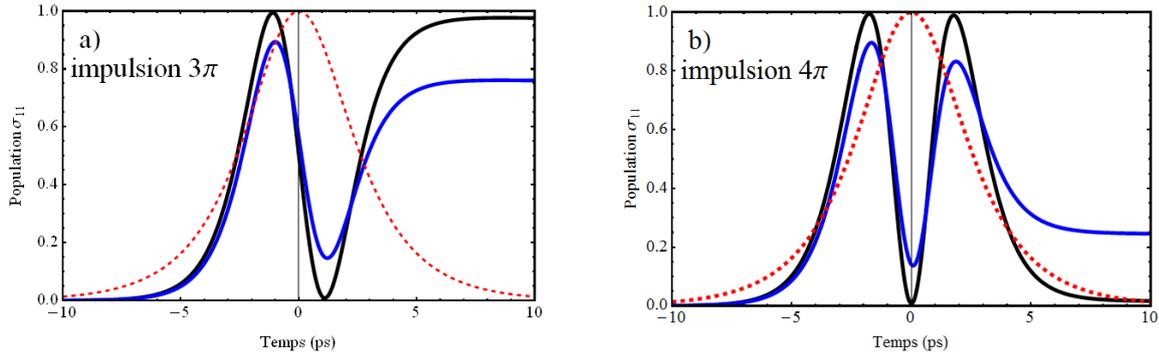


FIGURE 3.9 : Évolution de la population de l'état excité (traits pleins) durant une impulsion (pointillés) de durée $\tau = 2$ ps et a) d'aire $\theta = 3\pi$, b) d'aire $\theta = 4\pi$. En noir est représentée cette population pour $T_1 = 600$ ps et $T_2 = 250$ ps et en bleu pour $T_1 = 600$ ps et $T_2 = 10$ ps.

Rabi peut nous permettre de déterminer la relation entre puissance de l'onde incidente et aire de l'impulsion et de savoir ainsi quelle puissance utiliser pour mettre le système à deux niveaux étudié dans l'état désiré. Par exemple ici, une impulsion de $9 \mu W$ correspondra à une impulsion π et mettra ainsi le système dans l'état excité [1].

Pour mesurer l'intensité de la luminescence émise par la boîte, il nous faut au préalable soustraire le laser diffusé que l'on peut ajuster, comme c'est le cas en rouge dans la figure (3.8), par une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur constante et d'intensité proportionnelle à la puissance d'excitation, tandis que la raie d'émission de la boîte s'ajuste au moyen d'une fonction lorentzienne (en bleu dans la figure (3.8)). Les guides ne confinant pas parfaitement le laser, à mesure que la puissance de celui-ci augmente, sa diffusion empêche rapidement de distinguer la luminescence de la boîte. En outre, le fort amortissement des oscillations, que nous constatons dans la figure (3.7), fait que sur ce type d'échantillon nous n'avons pas été à même d'observer plus de deux périodes et demi d'oscillation. Pour chaque spectre, nous reportons les différentes valeurs de $I(\sqrt{\mathcal{P}})$ sur la courbe d'oscillation de Rabi, qui est ajustée, comme sur les figures (3.7), au moyen des équations de Bloch optiques. Sur ces courbes, nous avons fait figurer deux ajustements numériques, l'un (en bleu) obtenu avec les équations de Bloch optiques précédemment énoncées (3.74), et le second (en rouge) en tenant compte dans ces équations de relaxations supplémentaires sur les populations et les cohérences, que nous décrirons dans la partie suivante.

3.6.3 Amortissement des oscillations de Rabi

L'amortissement de l'oscillation de Rabi lorsque la puissance d'excitation augmente observé sur les figures (3.7) ne peut être ajusté au moyen des équations de Bloch (3.74) en l'état. En effet, celles ci prévoient bien un taux d'amortissement γ des oscillations de la population du niveau excité au cours de l'interaction lumière-matière, mais comme nous

travaillons en régime impulsionnel, pour que ce taux γ entraîne un amortissement des oscillations en fonction de l'aire de l'impulsion, il faudrait que l'état du système ait le temps d'osciller et de s'amortir durant l'impulsion de durée τ . Ce n'est pas le cas ici, puisque les impulsions ont une durée de $\tau = 2 \text{ ps}$, tandis que les durées de relaxations caractéristiques T_1 et T_2 des boîtes sont en moyenne de plusieurs centaines de picosecondes. Sur la figure (3.9) est représentée la population de l'état excité durant l'impulsion, pour un temps de cohérence moyen expérimentalement mesuré $T_2 = 250 \text{ ps}$ et pour un temps de cohérence $T_2 = 10 \text{ ps}$, assez court pour que l'amortissement puisse être visible dès les premières périodes d'oscillations de Rabi. Nous voyons bien que pour un tel système, aucun amortissement ne devrait être observé avant de nombreuses périodes d'oscillation. Nous avons par ailleurs tracé en pointillés bleus sur les figures (3.7), la courbe d'oscillation prenant en compte les paramètres $T_1 = 600 \text{ ps}$ et $T_2 = 250 \text{ ps}$ et nous voyons bien que l'amortissement n'est pas observable sur la gamme de puissance étudiée. Pour ajuster les points expérimentaux, il faudrait pour la courbe (3.7.a) prendre un temps de cohérence de 5 ps seulement, et pour la courbe (3.7.c), il est tout simplement impossible de l'ajuster ainsi, car comme le montre la figure (3.9.b), l'amortissement doit faire tendre la luminescence vers une valeur moyenne non nulle. Nous devons donc prendre en compte dans les deux cas un amortissement supplémentaire, dont l'origine physique reste encore à comprendre.

La figure (3.7) illustre donc différents cas de figure qui se sont présentés à nous. Nous avons en effet, pour certaines boîtes, observé un amortissement faisant tendre la luminescence vers une valeur stationnaire $I_{max}/2$, comme illustré par la courbe (3.7.a), et pour d'autres boîtes, un amortissement faisant tendre la luminescence vers une valeur stationnaire inférieure à $I_{max}/2$, comme le montre (3.7.b) et même parfois vers zéro, comme l'illustre (3.7.c). Si l'amortissement de la première courbe peut s'expliquer par l'interaction du système avec les phonons du réseau environnant entraînant une relaxation supplémentaire des cohérences [128], les deux courbes suivantes témoignent de la présence d'une relaxation supplémentaire, agissant cette fois sur les populations, ces deux types de relaxation étant fonction de la puissance incidente. Signalons que si ce dernier effet est peu traité dans la littérature, il a déjà été observé dans le cadre de la thèse de Romain Melet lors de l'étude de défauts d'interface de GaAs/GaAlAs [18].

3.6.3.a Relaxation des cohérences

En ne considérant que le temps de décohérence T_2 , il semble assez intuitif de penser que plus les impulsions utilisées pour exciter le système sont de longue durée, plus l'amortissement des oscillations de Rabi s'effectue rapidement [129]. En effet, plus la durée des impulsions s'approche du temps de cohérence, plus l'amortissement est rapide, comme cela est illustré par la figure (3.10), sur laquelle nous avons représenté l'évolution de la popula-

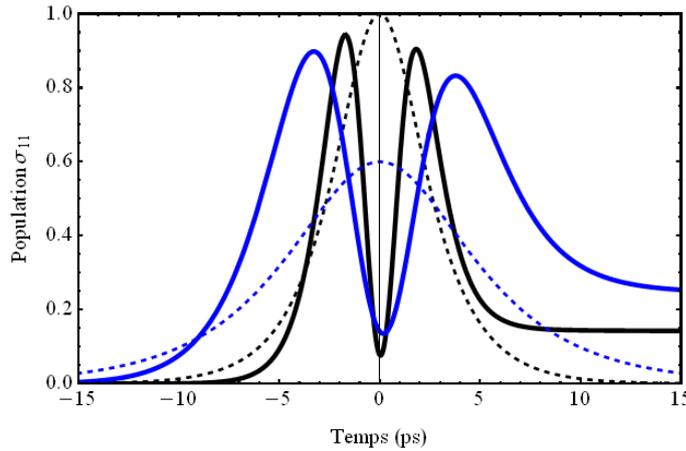


FIGURE 3.10 : Évolution de la population de l'état excité (traits pleins) durant une impulsion d'aire $\theta = 4\pi$ et de durée $\tau = 2$ ps (en noir) et $\tau = 4$ ps (en bleu) pour un système caractérisé par $T_1 = 600$ ps et $T_2 = 20$ ps.

tion de l'état excité d'un système à deux niveaux caractérisé par un temps de cohérence T_2 , pour une impulsion de durée $\tau = 0.1 T_2$ (en noir) et une impulsion de durée $\tau = 0.2 T_2$ (en bleu). Nous observons bien dans le second cas un amortissement plus rapide des oscillations de Rabi.

Cependant, plusieurs groupes [128, 130] ayant étudié l'amortissement des oscillations de Rabi en fonction de la durée des impulsions incidentes, ont constaté l'effet inverse, une diminution de l'amortissement à mesure qu'augmentait la durée des impulsions. Pour expliquer ce phénomène, nous devons nous rappeler que l'aire d'une impulsion dépend de sa durée, et de son intensité. Pour obtenir une même aire avec deux impulsions de durée différente, il faut donc en modifier la puissance. Ainsi, l'impulsion la plus courte est de plus forte puissance et l'amortissement plus important qu'elle engendre doit de ce fait provenir de cette forte excitation et non de la durée de l'impulsion. L'amortissement des oscillations de Rabi semble donc dû à une relaxation supplémentaire des cohérences, dépendant de l'intensité de l'onde incidente, et dont l'effet est bien supérieur à la relaxation caractéristique du système à deux niveaux donnée par le temps de cohérence indépendant de la puissance.

Cette relaxation supplémentaire des cohérences, se traduit par l'ajout d'un terme d'amortissement $\kappa \Omega^2$, dont l'origine sera précisée dans la partie 3.6.5, dans l'expression

des cohérences des équations de Bloch optiques, qui se réécrivent alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_R(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa \Omega_R^2(t)\right) \hat{\sigma}_{10}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = \frac{i}{2}\Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa \Omega_R^2(t)\right) \hat{\sigma}_{01}(t) \end{array} \right. \quad (3.115)$$

Ce terme d'amortissement supplémentaire dépend du carré de la pulsation de Rabi, c'est à dire de la puissance d'excitation et le pré-facteur κ prend en compte le couplage du système aux phonons du réseau et doit donc être proportionnel à la température. C'est au moyen de ce nouveau système d'équations que nous ajustons les points expérimentaux de la courbe (3.7.a). Cet accroissement de la perte de cohérence avec l'augmentation de la puissance a déjà été observé par différents groupes [93, 128, 130, 131, 132, 133, 134, 135, 136] et est désigné par le terme anglais "excitation induced dephasing" (EID).

3.6.3.b Relaxation des populations

Dans le second cas de figure, illustré par les figures (3.7.b) et (3.7.c), il est nécessaire pour expliquer l'amortissement faisant tendre la population du niveau excité vers une valeur inférieure à $I_{max}/2$, d'introduire une relaxation supplémentaire de population, dépendant elle aussi de la puissance d'excitation. Afin d'ajuster les points expérimentaux, nous devons réécrire les équations de Bloch, en y introduisant de manière phénoménologique ce terme de relaxation, sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_R(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \left(\frac{1}{T_1} + \alpha \Omega_R^2(t)\right) \sigma_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa \Omega_R^2(t)\right) \hat{\sigma}_{10}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = \frac{i}{2}\Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa \Omega_R^2(t)\right) \hat{\sigma}_{01}(t) \end{array} \right. \quad (3.116)$$

où α est une constante d'ajustement. L'ajout de ce terme en Ω_R^2 provient de l'observation expérimentale pour certaines boîtes, d'une décroissance du temps de vie mesuré sous excitation résonnante qui est inversement proportionnel à la puissance d'excitation donc au carré de l'amplitude du champ électrique auquel est proportionnel la pulsation de Rabi Ω_R . Ces résultats seront présentés au chapitre suivant. Ainsi nous avons :

$$\frac{1}{T_1^\theta} = \frac{1}{T_1} + \alpha \Omega_R^2 \quad (3.117)$$

L'origine de cette relaxation supplémentaire qui permet de rendre compte de l'amortissement vers zéro des oscillations de Rabi est dure à identifier. Ce comportement a déjà été observé, dans les boîtes formées par des défauts d'interface par Stievater et al. [93], qui l'ont attribué à l'interaction du système avec des états délocalisés, augmentant ainsi le taux de relaxation de la population de l'état excité et diminuant de fait son temps de vie T_1 , et pouvant par ailleurs modifier la fréquence de résonance de l'exciton fondamental. L'absence de cet effet pour de nombreuses boîtes pourrait alors s'expliquer par un meilleur confinement des porteurs de charges dans celles-ci, et donc une plus faible interaction avec leur environnement. En effet, dans les boîtes quantiques auto-organisées où le confinement est plus important, ce type de comportement est beaucoup plus rarement observé [130]. Si nous avons un instant envisagé des processus de capture par effet Auger [137], il semblerait d'après [131] que ceux-ci n'engendrent pas un tel amortissement des oscillations de Rabi.

3.6.4 Oscillations de Rabi d'un système à trois niveaux

Comme nous l'avons mentionné dans le premier chapitre, dans un système réel, en raison d'une brisure de la symétrie du système, la dégénérescence des états propres de l'exciton est levée et le système originellement à deux niveaux en comporte alors trois. En raison de la polarisation verticale du laser d'excitation, nous avons longtemps cru qu'au cours des expériences résonnantes, un seul des deux états propres de structure fine était excité, celui parallèle à la polarisation du laser incident dirigé selon la direction cristallographique $[1\bar{1}0]$. Nous ne nous expliquions pas alors les courbes telles que celles représentées figure (3.11) pour lesquelles nous voyions l'intensité de la luminescence augmenter à chaque période. Nous avons tout d'abord pensé qu'à la courbe d'oscillations de Rabi s'ajoutaient un fond provenant des réflexions subies par les impulsions aux interface semi-conducteur/air, à chaque extrémité du guide et c'est pour cette raison que nous avons réalisé des guides inclinés d'un angle de 7° . Comme nous l'avons montré au second chapitre de ce manuscrit, cette inclinaison a pour effet de réduire drastiquement les réflexions à l'intérieur du guide, mais cela n'a pas modifié nos observations expérimentales. Ainsi, la seconde courbe présentée sur la figure (3.11) a été obtenue pour un guide incliné et présente le même comportement.

Lorsque nous avons démontré, comme ce sera exposé dans le cinquième chapitre, la présence d'un mélange des états de la bande de valence, résultant en une inclinaison de la polarisation des états propres de structure fine, nous avons réalisé que les deux états propres excitoniques étaient excités de manière résonnante, la largeur spectrale du laser étant supérieure à celle du splitting entre les deux états propres. Nous avons dans ce cas un système à trois niveaux, schématisé sur le figure (3.12), pour lequel il est nécessaire de compléter les équations de Bloch. Nous ne chercherons pas dans le cadre de cette thèse à

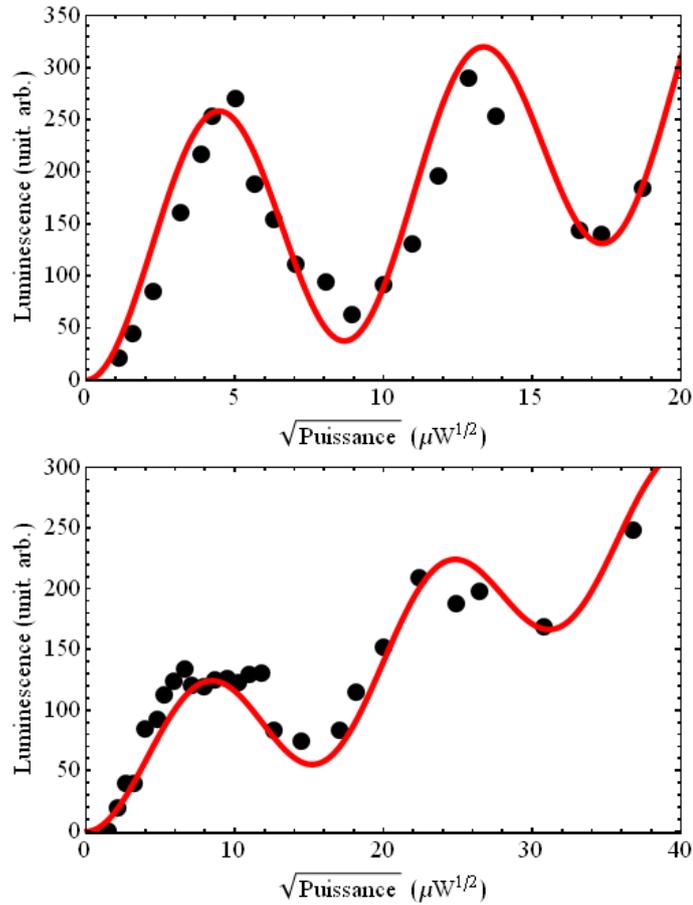


FIGURE 3.11 : *Courbes d'oscillations de Rabi ajustées en prenant en compte l'existence d'un troisième niveau dans les équations de Bloch. La première correspond au cas où le rapport des pulsations de Rabi des deux états est proche de 0.05 et la seconde au cas où il est proche de 0.5.*

étudier de manière rigoureuse l'évolution d'un tel système, mais simplement à donner une explication plausible à certains de nos résultats expérimentaux.

Commençons par considérer le système totalement isolé de l'extérieur et négligeons toute relaxation. Faisons l'hypothèse que lorsque le système est soumis à un rayonnement électromagnétique classique, les deux états propres excités $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ se trouvent chacun couplés de manière résonante au niveau fondamental $|0\rangle$, mais ne le sont pas entre eux.

Comme nous négligeons pour l'instant toute relaxation du système et ne cherchons qu'à connaître l'évolution temporelle de la population des états excités, nous pouvons nous contenter d'une description dans le formalisme du vecteur d'état. L'état du système à l'instant t est alors une combinaison linéaire des trois états propres considérés, $|0\rangle$, $|\tilde{X}\rangle$ et

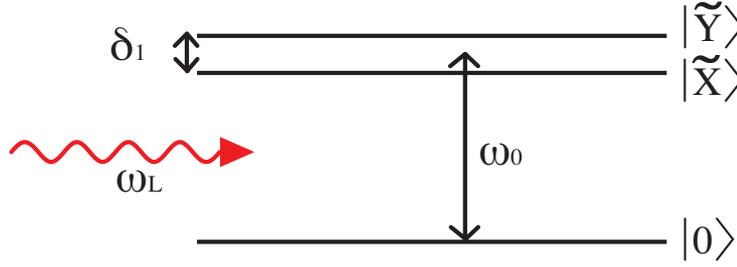


FIGURE 3.12 : Schéma du système à trois niveaux.

$|\tilde{Y}\rangle$:

$$|\psi(t)\rangle = C_0(t) |0\rangle + C_{\tilde{X}}(t) |\tilde{X}\rangle + C_{\tilde{Y}}(t) |\tilde{Y}\rangle \quad (3.118)$$

où les coefficients complexes $C_0(t)$, $C_{\tilde{X}}$ et $C_{\tilde{Y}}$ vérifient la condition de normalisation :

$$C_0(t)C_0^*(t) + C_{\tilde{X}}(t)C_{\tilde{X}}^*(t) + C_{\tilde{Y}}(t)C_{\tilde{Y}}^*(t) = 1 \quad (3.119)$$

Les trois états propres ayant respectivement pour énergie propre E_0 , $E_{\tilde{X}}$ et $E_{\tilde{Y}}$, le hamiltonien libre du système à deux niveaux prend la forme :

$$\hat{H}_0 = E_0 |0\rangle \langle 0| + E_{\tilde{X}} |\tilde{X}\rangle \langle \tilde{X}| + E_{\tilde{Y}} |\tilde{Y}\rangle \langle \tilde{Y}| \quad (3.120)$$

Le système est soumis à un champ que nous choisirons pour l'instant continu, de la forme (3.18). En se plaçant dans l'approximation des grandes longueurs d'onde et dans le point de vue dipolaire, le hamiltonien du système {boîte quantique + champ} s'écrit comme nous l'avons vu :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}(t) \quad (3.121)$$

où \hat{H}_0 est le hamiltonien libre du système à trois niveaux donné par (3.120) et $\hat{H}_{int}(t)$ le hamiltonien d'interaction couplant l'état fondamental aux deux états excités et donné par :

$$\hat{H}_{int} = -\hbar \left[\Omega_{\tilde{X}} \left(|0\rangle \langle \tilde{X}| + |\tilde{X}\rangle \langle 0| \right) + \Omega_{\tilde{Y}} \left(|0\rangle \langle \tilde{Y}| + |\tilde{Y}\rangle \langle 0| \right) \right] \cos(\omega_L t + \phi) \quad (3.122)$$

Nous avons introduit la pulsation de Rabi de chaque état :

$$\begin{cases} \Omega_{\tilde{X}} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{\tilde{X}} \cdot \mathbf{E}_L}{\hbar} \\ \Omega_{\tilde{Y}} = \frac{\boldsymbol{\mu}_{\tilde{Y}} \cdot \mathbf{E}_L}{\hbar} \end{cases} \quad (3.123)$$

Le moment dipolaire moyen, proportionnel à la force d'oscillateur de chaque transition, est a priori différent pour des deux états excités. En outre, les produits scalaires $\boldsymbol{\mu}_{\tilde{X}} \cdot \mathbf{E}_L$ et $\boldsymbol{\mu}_{\tilde{Y}} \cdot \mathbf{E}_L$, dépendent également de l'angle que $\boldsymbol{\mu}_{\tilde{X}}$ et $\boldsymbol{\mu}_{\tilde{Y}}$ forment avec la polarisation du champ incident et sont forcément différents pour les états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, même si $|\boldsymbol{\mu}_{\tilde{X}}| = |\boldsymbol{\mu}_{\tilde{Y}}|$.

Les pulsations de Rabi $\Omega_{\tilde{X}}$ et $\Omega_{\tilde{Y}}$ des deux transitions peuvent donc être très différentes l'une de l'autre, même si le module de moment dipolaire est le même.

L'évolution temporelle du vecteur d'état (3.118) est donnée par l'équation de Schrödinger :

$$i \hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \left(\hat{H}_0 + \hat{H}_{int} \right) |\psi(t)\rangle \quad (3.124)$$

soit :

$$i \hbar \left(\dot{C}_0 |0\rangle + \dot{C}_{\tilde{X}} |\tilde{X}\rangle + \dot{C}_{\tilde{Y}} |\tilde{Y}\rangle \right) = E_0 C_0 |0\rangle + E_{\tilde{X}} C_{\tilde{X}} |\tilde{X}\rangle + E_{\tilde{Y}} C_{\tilde{X}} |\tilde{Y}\rangle - \hbar \left[\Omega_{\tilde{X}} \left(C_0 |\tilde{X}\rangle + C_{\tilde{X}} |0\rangle \right) + \Omega_{\tilde{Y}} \left(C_0 |\tilde{Y}\rangle + C_{\tilde{Y}} |0\rangle \right) \right] \cos(\omega_L t + \phi) \quad (3.125)$$

En projetant sur les vecteurs propres $|0\rangle$, $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, nous obtenons alors le système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} i \hbar \dot{C}_0(t) = C_0(t)E_0 - \hbar [C_{\tilde{X}}(t)\Omega_{\tilde{X}} + C_{\tilde{Y}}(t)\Omega_{\tilde{Y}}] \cos(\omega_L t + \phi) \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{X}}(t) = C_{\tilde{X}}(t)E_{\tilde{X}} - \hbar C_0(t)\Omega_{\tilde{X}} \cos(\omega_L t + \phi) \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{Y}}(t) = C_{\tilde{Y}}(t)E_{\tilde{Y}} - \hbar C_0(t)\Omega_{\tilde{Y}} \cos(\omega_L t + \phi) \end{cases} \quad (3.126)$$

Le splitting de structure fine δ_{FSS} étant très faible devant l'énergie $\hbar\omega_0 = E_1 - E_0$, nous ferons ici l'approximation $E_{\tilde{X}} = E_{\tilde{Y}} = E_1$. En faisant de plus l'approximation séculaire, nous réécrivons le système (3.126) sous la forme :

$$\begin{cases} i \hbar \dot{C}_0(t) = C_0(t)E_0 - \frac{\hbar}{2} [C_{\tilde{X}}(t)\Omega_{\tilde{X}} + C_{\tilde{Y}}(t)\Omega_{\tilde{Y}}] e^{i(\omega_L t + \phi)} \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{X}}(t) = C_{\tilde{X}}(t)E_1 - \frac{\hbar}{2} C_0(t)\Omega_{\tilde{X}} e^{-i(\omega_L t + \phi)} \\ i \hbar \dot{C}_{\tilde{Y}}(t) = C_{\tilde{Y}}(t)E_1 - \frac{\hbar}{2} C_0(t)\Omega_{\tilde{Y}} e^{-i(\omega_L t + \phi)} \end{cases} \quad (3.127)$$

Pour résoudre ce système, procédons au changement de variables :

$$\begin{cases} \mathfrak{C}_0(t) = C_0(t)e^{iE_0 t/\hbar} \\ \mathfrak{C}_{\tilde{X}}(t) = C_{\tilde{X}}(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{i\omega_L t + \phi} \\ \mathfrak{C}_{\tilde{Y}}(t) = C_{\tilde{Y}}(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{i\omega_L t + \phi} \end{cases} \quad (3.128)$$

dont la dérivée temporelle s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{\mathfrak{C}}_0(t) = \dot{C}_0(t)e^{iE_0 t/\hbar} + i\frac{E_0}{\hbar}\mathfrak{C}_0(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_{\tilde{X}}(t) = \dot{C}_{\tilde{X}}(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{-i(\omega_L t + \phi)} + i\left(\frac{E_0}{\hbar} + \omega_L\right)\mathfrak{C}_{\tilde{X}}(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_{\tilde{Y}}(t) = \dot{C}_{\tilde{Y}}(t)e^{iE_0 t/\hbar} e^{-i(\omega_L t + \phi)} + i\left(\frac{E_0}{\hbar} + \omega_L\right)\mathfrak{C}_{\tilde{Y}}(t) \end{cases} \quad (3.129)$$

Le système (3.127) devient alors :

$$\begin{cases} \dot{\mathfrak{C}}_0(t) = \dot{C}_0(t)e^{iE_0t/\hbar} + i\frac{E_0}{\hbar}\mathfrak{C}_0(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_{\tilde{X}}(t) = \dot{C}_{\tilde{X}}(t)e^{iE_0t/\hbar}e^{-i(\omega_L t + \phi)} + i\left(\frac{E_0}{\hbar} + \omega_L\right)\mathfrak{C}_{\tilde{X}}(t) \\ \dot{\mathfrak{C}}_{\tilde{Y}}(t) = \dot{C}_{\tilde{Y}}(t)e^{iE_0t/\hbar}e^{-i(\omega_L t + \phi)} + i\left(\frac{E_0}{\hbar} + \omega_L\right)\mathfrak{C}_{\tilde{Y}}(t) \end{cases} \quad (3.130)$$

Ce système de trois équations différentielles couplées peut se résoudre numériquement. En prenant comme condition initiale le système dans son état fondamental, c'est à dire $C_0(0) = 1$ et $C_{\tilde{X}}(0) = C_{\tilde{Y}}(0) = 0$, nous obtenons l'expression des populations $C_{\tilde{X}}C_{\tilde{X}}^* = \mathfrak{C}_{\tilde{X}}\mathfrak{C}_{\tilde{X}}^*$ et $C_{\tilde{Y}}C_{\tilde{Y}}^* = \mathfrak{C}_{\tilde{Y}}\mathfrak{C}_{\tilde{Y}}^*$ des deux états excités. En se plaçant alors non plus dans le cadre d'une excitation continue, mais dans celui d'impulsions sécantes hyperboliques, le calcul numérique de l'intégrale dans le temps de ces populations nous permet alors d'ajuster nos courbes expérimentales, comme cela a été fait pour les courbes de la figure (3.11).

Sur la figure (3.11), nous avons représenté deux cas limites d'oscillations de Rabi pour un système à trois niveaux tel que nous l'avons modélisé. La première courbe correspond à un rapport des pulsations de Rabi $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.05$. Comme nous l'avons déjà mentionné, cela ne présuppose en rien du rapport entre les forces d'oscillateur des deux états, puisque les pulsations de Rabi dépendent du produit scalaire du moment dipolaire et du champ électrique incident. Ainsi, la courbe représentée figure (3.11.a) correspond à une situation où les deux états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ sont presque alignés selon les axes cristallographiques et l'état $|\tilde{X}\rangle$, est donc peu excité. Ceci est corroboré par les mesures en polarisation effectuées sur la même boîte, qui nous permettent de déterminer l'orientation des deux états propres, ainsi que le rapport de leur force d'oscillateur. Nous avons déterminé pour la boîte dont l'oscillation est représentée figure (3.11.a) une inclinaison d'environ 3° des états propres par rapport aux axes cristallographiques, et un rapport entre les forces d'oscillateur des deux transitions de $\mathcal{R} = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}} = 1.2$. Ce qui, en calculant :

$$\frac{\Omega_{\tilde{X}}}{\Omega_{\tilde{Y}}} = \frac{\mu_{\tilde{X}}}{\mu_{\tilde{Y}}} \left| \frac{\sin(\phi_{\tilde{X}})}{\cos(\phi_{\tilde{Y}})} \right| = \sqrt{\frac{\mathcal{F}_{\tilde{X}}}{\mathcal{F}_{\tilde{Y}}}} \left| \frac{\sin(\phi_{\tilde{X}})}{\cos(\phi_{\tilde{Y}})} \right| = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{R}}} \left| \frac{\sin(\phi_{\tilde{X}})}{\cos(\phi_{\tilde{Y}})} \right| \quad (3.131)$$

donne bien approximativement le rapport de $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.05$ déterminé en ajustant la courbe d'oscillations de Rabi.

De même, en ajustant la courbe (3.11.b), nous avons trouvé un rapport des pulsations de Rabi $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.5$. Or pour cette même boîte, nous avons déterminé au moyen d'expériences résolues en polarisation une inclinaison d'environ 10° des états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$

par rapport aux axes cristallographiques, et un rapport entre les forces d'oscillateur des deux transitions de $\mathcal{R} = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}} = 0.6$. En reprenant la formule (3.131), nous retrouvons approximativement un rapport $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.5$.

Nous venons donc de voir comment, sans chercher à en faire une description rigoureuse, la prise en compte d'un troisième niveau, excité lui aussi de manière résonnante, peut expliquer certains de nos résultats expérimentaux. Nous avons pour l'instant négligé toute relaxation des populations et des cohérences, qui seront prises en compte dans un modèle plus complet explicité à la fin de ce chapitre. Nous avons également, en raison des différences d'énergies entrant en jeu, pu faire l'approximation raisonnable de deux niveaux excités de même énergie, afin de simplifier l'écriture des équations de Bloch optiques de notre système à trois niveaux. Nous avons finalement, dans notre modèle simple, considéré que les deux niveaux excités n'étaient pas couplés entre eux. Cette dernière hypothèse ne semble toutefois pas aberrante, puisque les résultats issus de cette modélisation sont en assez bon accord avec les résultats obtenus de manière totalement indépendante au moyen de l'étude de la polarisation de la luminescence émise par les boîtes.

3.6.5 Rôle des phonons dans l'amortissement des oscillations de Rabi.

L'amortissement des oscillations de Rabi observé par de nombreux groupes est toujours sujet à débat. En effet, trois mécanismes différents sont à l'heure actuelle envisagés, l'excitation de transitions multiexcitoniques [132], la perte de cohérence provenant de l'interaction du système excitonique d'une boîte quantique avec les états mixtes de la couche de mouillage [130], et les processus de déphasage générés par l'interaction du système excitonique avec les phonons acoustiques (LA) du réseau environnant [128]. C'est à ce dernier mécanisme que nous nous intéresserons par la suite, en réalisant des expériences d'oscillations de Rabi pour différentes températures, ainsi qu'une modélisation de l'interaction électron-phonon LA, réalisée dans l'Annexe E.

Signalons que nous avons utilisé dans notre calcul une méthode perturbative qui nous semble correspondre à notre système. Une autre approche [138], utilisant le formalisme de l'intégrale de chemin peut également être utilisée dans le cas d'un couplage fort au phonons. Une résolution numérique effectuée par Vagov et al. [138] a ainsi démontré la réapparition de l'oscillation de Rabi amortie (sous excitation impulsionnelle, l'amortissement de la population de l'état excité en fonction du temps est elle bien définitive), lorsque l'aire de l'impulsion continue d'augmenter. Ce comportement prendrait place quelle que soit la température et la durée des impulsions, à condition que le système soit bien à deux niveaux et que les processus de déphasage pur soient dominants. N'ayant jamais observé ce type de comportement, nous sommes confortés dans notre opinion que dans nos systèmes, une approche perturbative suffit à décrire l'interaction avec les phonons du réseau, d'autant

que nos résultats expérimentaux semblent assez bien correspondre au modèle ainsi obtenu.

Au final, en prenant en compte la décohérence induite par les phonons, les équations de Bloch optiques se réécrivent sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\sigma_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_R^2(t) \right) \hat{\sigma}_{10}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = \frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_R^2(t) \right) \hat{\sigma}_{01}(t) \end{cases} \quad (3.132)$$

où $\kappa(T) = \mathcal{K}T$ avec un coefficient de proportionnalité \mathcal{K} dépend uniquement des propriétés du matériau massif, que nous avons estimé approximativement à $\mathcal{K}_{theo} \approx 10 \text{ fs.K}^{-1}$ pour le GaAs (cf Annexe E).

Intéressons nous alors aux oscillations de Rabi effectuées sur une même boîte pour plusieurs températures, afin de confirmer le rôle prépondérant des phonons dans l'amortissement des oscillations de Rabi. Notons que le terme de décohérence $1/T_2$ que nous mesurons expérimentalement est obtenu pour une température de 7 K et une impulsion d'aire $\theta = \pi/2$, il prend donc déjà en compte un certain déphasage dû au phonons.

Au cours de ces mesures, nous avons fait varier la température de l'échantillon de 7 K à 30 K et pour chaque boîte étudiée sous excitation résonnante, nous avons réalisé une courbe d'oscillation de Rabi pour différentes températures. La difficulté de ces expériences réside dans la modification de l'énergie de la transition à mesure que la température augmente, ce qui nécessite une modification de la longueur d'onde d'excitation. Cette manipulation peut avoir pour effet de changer les paramètre de couplage entre le champ électromagnétique et le moment dipolaire de la boîte étudiée. En outre, le changement de température fait également varier la position verticale de l'échantillon, et il devient indispensable de changer la position des objectifs d'excitation et de détection. La modification des conditions d'excitation peut à son tour modifier le couplage entre le champ et la boîte. En raison de ces limites expérimentales, l'étude d'une boîte quantique au delà de 30 K est rendue très difficile, même si son émission persiste jusqu'à une cinquantaine de Kelvins.

Bien que certains groupes [128, 139] aient observé une variation de la période de Rabi avec la température, nous n'avons pour notre part pu mettre en évidence un tel phénomène. En effet, cette variation est visible au delà de $20 \text{ K} - 25 \text{ K}$ et les changements de période de Rabi que nous observons à ces températures peuvent être en partie attribués à la modification du couplage lumière-matière.

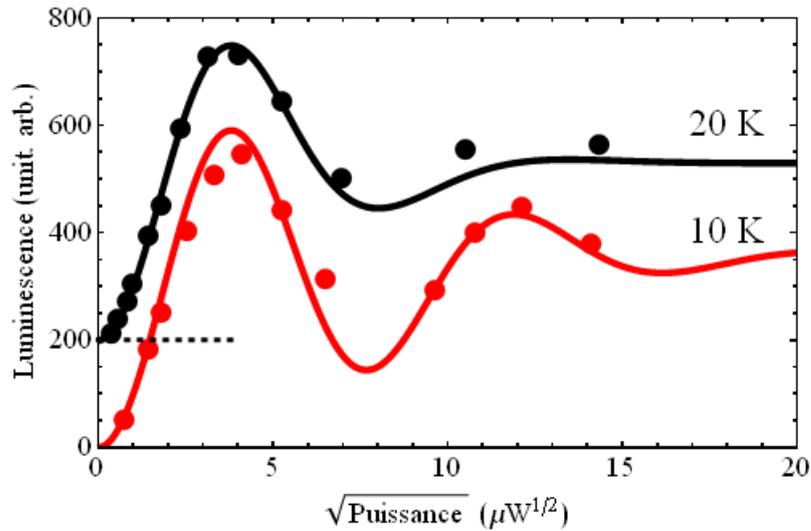


FIGURE 3.13 : Courbes d'oscillations de Rabi pour une même boîte quantique sous excitation résonnante avec sa transition fondamentale, à 10°K en rouge et à 20 K en noir. Les courbes expérimentales ont été ajustées numériquement au moyen des équations (3.133).

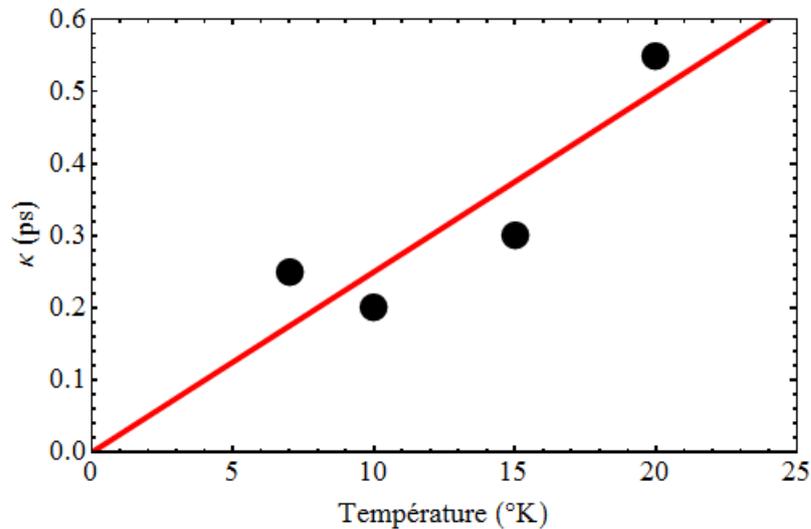


FIGURE 3.14 : Évolution du facteur d'amortissement $\kappa(T)$ des oscillations de Rabi en fonction de la température.

Sur la figure (3.13) sont représentées, pour une même boîte, les courbes d'oscillations de Rabi réalisées pour deux températures différentes, 10 K et 20 K . Nous constatons bien une augmentation de l'amortissement des oscillations avec la température. Si nous traçons figure (3.14), l'évolution en fonction de la température du facteur d'amortissement $\kappa(T)$, au moyen duquel nous avons ajusté les courbes expérimentales (en utilisant les équations de Bloch données par (3.132)), alors comme attendu, la courbe obtenue est une fonction affine,

de coefficient directeur $\mathcal{K}_{exp} \approx 25 \text{ fs.K}^{-1}$. Si l'ordre de grandeur reste le même que \mathcal{K}_{theo} (estimé dans l'Annexe E à 10 fs.K^{-1}), cette valeur expérimentale représente plus du double de la valeur théorique. Cette différence peut s'expliquer par la nécessité de considérer en réalité un système à trois niveaux, afin de rendre compte de l'amortissement des oscillations vers une valeur $I(\theta = \pi)/1.7$. En effet, en ne considérant qu'un système à deux niveaux dont l'évolution est donnée par (3.132), l'amortissement devrait faire tendre la luminescence vers la moitié de sa valeur maximale $I(\theta = \pi)/2$. Pour obtenir un amortissement vers une valeur supérieure, il faut introduire un terme de repopulation, tandis que pour qu'il s'effectue vers une valeur inférieure, il faut au contraire introduire un terme de fuite de population. La prise en compte d'un troisième niveau permet alors de s'affranchir de l'ajout du terme de repeuplement de l'état excité, généralement introduit de manière phénoménologique. Nous ajustons nos courbes expérimentales au moyen du système d'équation :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_{\tilde{X}\tilde{X}}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_{\tilde{X}}(t) (\hat{\sigma}_{\tilde{X}0}(t) - \hat{\sigma}_{0\tilde{X}}(t)) - \frac{\sigma_{\tilde{X}\tilde{X}}(t)}{T_1^{\tilde{X}}} \\ \dot{\sigma}_{\tilde{Y}\tilde{Y}}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_{\tilde{Y}}(t) (\hat{\sigma}_{\tilde{Y}0}(t) - \hat{\sigma}_{0\tilde{Y}}(t)) - \frac{\sigma_{\tilde{Y}\tilde{Y}}(t)}{T_1^{\tilde{Y}}} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{\tilde{X}\tilde{X}}(t) - \dot{\sigma}_{\tilde{Y}\tilde{Y}}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{\tilde{X}0}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_{\tilde{X}}(t) (\sigma_{\tilde{X}\tilde{X}}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_{\tilde{X}}^2(t) \right) \hat{\sigma}_{\tilde{X}0}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{0\tilde{X}}(t) = \frac{i}{2}\Omega_{\tilde{X}}(t) (\sigma_{\tilde{X}\tilde{X}}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_{\tilde{X}}^2(t) \right) \hat{\sigma}_{0\tilde{X}}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{\tilde{Y}0}(t) = -\frac{i}{2}\Omega_{\tilde{Y}}(t) (\sigma_{\tilde{Y}\tilde{Y}}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_{\tilde{Y}}^2(t) \right) \hat{\sigma}_{\tilde{Y}0}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{0\tilde{Y}}(t) = \frac{i}{2}\Omega_{\tilde{Y}}(t) (\sigma_{\tilde{Y}\tilde{Y}}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_{\tilde{Y}}^2(t) \right) \hat{\sigma}_{0\tilde{Y}}(t) \end{array} \right. \quad (3.133)$$

Sur la figure (3.15), nous avons simulé une courbe d'oscillations de Rabi, dans le cas d'un système à deux niveaux (en noir) et dans celui d'un système à trois niveaux (en rouge), pour lequel nous avons posé $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.2$ (rapport utilisé pour ajuster les courbes (3.13)). Pour les deux courbes, tous les paramètres ont été choisis identiques, en particulier le facteur d'amortissement $\kappa = 0.25 \text{ ps}$. Nous constatons donc que le système à deux niveaux s'amortit bien vers $I(\theta = \pi)/2$, tandis que le système à trois niveaux s'amortit vers $I(\theta = \pi)/1.5$.

Une étude de la polarisation de la luminescence émise par la boîte considérée dans la figure (3.13), sous excitation non résonnante et sous excitation résonnante, a été préalablement réalisée et a permis de déterminer, selon une méthode exposée dans le cinquième chapitre, l'inclinaison $\phi_{\tilde{X}} = -6.5^\circ$ et $\phi_{\tilde{Y}} = -13.5^\circ$ des états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, ainsi que le

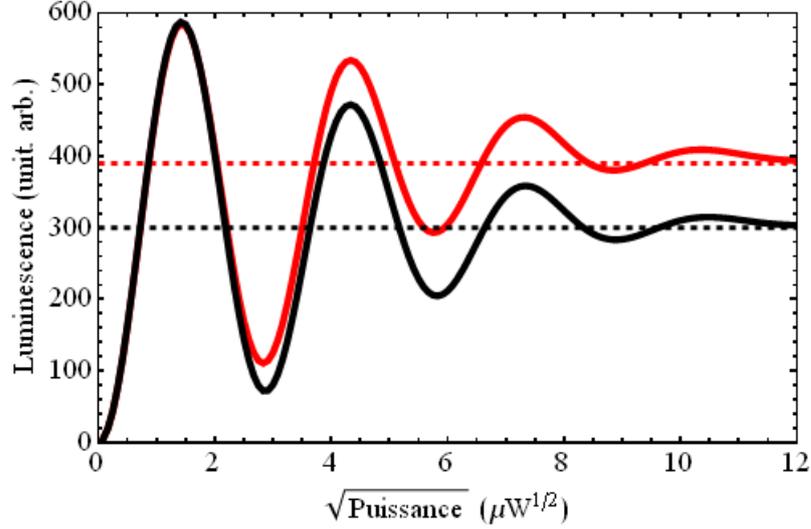


FIGURE 3.15 : Comparaison, pour un même facteur d'amortissement $\kappa = 0.25ps$ entre les oscillations de Rabi, en noir celles d'un système à deux niveaux, et en rouge celles d'un système à trois niveaux pour lequel $\Omega_{\tilde{X}}/\Omega_{\tilde{Y}} = 0.2$.

rapport des forces d'oscillateur $\mathcal{R} = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}} = 0.8$. Nous avons ainsi pu déduire le rapport des pulsations de Rabi :

$$\frac{\Omega_{\tilde{X}}}{\Omega_{\tilde{Y}}} = \frac{1}{\sqrt{\mathcal{R}}} \left| \frac{\sin(\phi_{\tilde{X}})}{\cos(\phi_{\tilde{Y}})} \right| \approx 0.13 \quad (3.134)$$

que nous avons reporté dans le système (3.133). Nous avons de même obtenu et reporté dans le système le rapport des temps de vie $T_1^{\tilde{X}}/T_1^{\tilde{Y}} = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}} = 0.8$. L'ajustement des courbes expérimentales au moyen de (3.133) nous a alors permis de déterminer, pour chaque température, la paramètre d'ajustement $\kappa(T)$. Ce sont les paramètres ainsi déterminés qui ont été représentés sur la figure (3.14) et permis d'évaluer $\mathcal{K}_{exp} \approx 25 \text{ fs.K}^{-1}$.

Nous imaginons aisément que l'ensemble des approximations réalisées dans notre modèle à trois niveaux, qui n'est pour l'instant qu'une ébauche, puissent conduire à la différence observée entre \mathcal{K}_{exp} et \mathcal{K}_{theo} . Le fait que malgré cela la valeur expérimentale trouvée reste du même ordre de grandeur que la valeur théorique nous permet de confirmer notre idée première, à savoir que les processus de décohérence engendrés par l'interaction entre le système excitonique et les phonons du réseau environnant sont les principaux responsables de l'amortissement des oscillations de Rabi dans nos boîtes quantiques, dans le cas où il n'y a pas de relaxation de population supplémentaire.

Signalons finalement que certains groupes [131, 133] ont eux même observé des oscillations de Rabi s'amortissant vers une valeur supérieure à $I_{max}/2$ et ont expliqué cela en faisant intervenir la transition biexcitonique. Si nous n'excluons pas totalement cette ex-

plication, nous lui préférons un système à trois niveaux dont le comportement est en assez bon accord avec les mesures effectuées au cours d'expériences en polarisation, comme cela sera décrit au cinquième chapitre de ce mémoire. En outre, nous avons sur l'échantillon étudié observé peu de transitions biexcitoniques, en particulier aux puissances considérées ici et les rares que nous ayons été capables de mettre en évidence étaient de très faible intensité en comparaison de la transition excitonique correspondante.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté l'interaction d'un système à deux niveaux avec une onde électromagnétique résonnante avec la transition entre les deux niveaux, résultant en une oscillation de l'état du système, l'oscillation de Rabi. En introduisant ensuite le formalisme de la matrice densité, nous avons pu déterminer les équations de Bloch optiques qui régissent l'évolution temporelle des populations (termes diagonaux de la matrice densité) et des cohérences (termes non diagonaux de la matrice densité) et constater l'effet d'une relaxation des cohérences sur l'évolution des populations. Pour finir, nous avons présenté nos résultats expérimentaux obtenus en régime impulsionnel. Ces résultats très différents du modèle théorique donné par les équations de Bloch ont révélé la nécessité de prendre en compte une perte de cohérence supplémentaire induite par l'excitation et, dans certains cas une fuite de population supplémentaire elle aussi induite par l'excitation, tandis que dans d'autres cas une repopulation de l'état excité semble se produire. Des expériences réalisées à différentes températures nous ont permis de mettre en évidence le rôle majeur des phonons dans la relaxation des cohérences induite par l'excitation et d'expliquer ainsi le premier mécanisme. Par ailleurs, la prise en compte de la structure fine de l'exciton par l'introduction dans les équations de Bloch d'un troisième niveau nous a permis de nous affranchir du terme de repopulation mentionné dans le dernier cas de figure. Enfin, la relaxation de population résultant de l'augmentation de la puissance d'excitation observée pour certaines boîtes pourrait s'expliquer par un plus faible confinement des porteurs dans celles-ci.

Chapitre 4

Constantes de temps caractéristiques

Sommaire

4.1	Émission spontanée	142
4.1.1	Approche de Wigner-Weisskopf : durée de vie radiative	143
4.1.2	Relaxation du système par émission spontanée	144
4.2	Mesures directes des temps de relaxation du système à deux niveaux	146
4.2.1	Temps de vie	146
4.2.2	Temps de cohérence	152
4.3	Contrôle cohérent	156
4.3.1	Interaction d'un système à deux niveaux avec deux impulsions successives	156
4.3.1.a	Interaction du système à deux niveaux avec la première impulsion	156
4.3.1.b	Interaction du système à deux niveaux avec la seconde impulsion	158
4.3.1.c	Expression de la luminescence mesurée après l'interaction du système avec les deux impulsions successives	163
4.3.2	Détermination du temps de cohérence	165
4.3.2.a	Principe de la mesure	165
4.3.2.b	Résultats expérimentaux	166
4.3.3	Détermination du temps de vie	171
4.3.3.a	Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi$	171
4.3.3.b	Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$	175
4.4	Processus de décohérence	177

Dans ce chapitre, nous commencerons par examiner, dans le cas d'un système isolé de son environnement, l'origine de ces relaxations, puis nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus pour nos boîtes quantiques et comparerons les deux. Les mesures des deux durées caractéristiques qui seront présentées ici ont été réalisées de différentes manières. Des mesures directes de temps de vie ont pu être obtenues au moyen d'une photo-diode à avalanche qui nous a permis d'observer la décroissance temporelle de la luminescence, tandis que l'interféromètre de Fabry-Pérot précédemment présenté a été utilisé afin de résoudre la raie d'émission de la transition fondamentale de l'exciton neutre, pour en mesurer la largeur et en déduire ainsi le temps de cohérence. Ces temps de relaxation ont également pu être obtenus par des expériences de contrôle cohérent au cours desquelles le système à deux niveaux interagit successivement avec deux impulsions lumineuses dont le déphasage relatif est précisément connu et contrôlé.

4.1 Émission spontanée

Le temps de vie T_1 d'un système à deux niveaux correspond à la durée moyenne au cours de laquelle le système préalablement excité reste dans son état de plus haute énergie, une fois l'excitation coupée. La principale cause de désexcitation dans notre cas est l'émission spontanée. Pour comprendre cette dernière, il faut se placer dans le cadre d'une théorie totalement quantique, c'est à dire où le rayonnement est également quantifié [59, 115, 116]. Nous écrirons donc les états propres de l'ensemble { système + champ } sous la forme :

$$|s\rangle \otimes |R\rangle = |s; R\rangle \quad (4.1)$$

où $|s\rangle$ désigne l'état du système à deux niveaux et $|R\rangle$ l'état du rayonnement.

Pour étudier le temps de relaxation T_1 , considérons que le système initialement est dans son niveau excité $|1\rangle$, en présence du vide, son état s'écrivant alors :

$$|\psi(0)\rangle = |1\rangle \otimes |0\rangle = |1; 0\rangle \quad (4.2)$$

Cet état est couplé par un terme d'interaction \hat{H}_{int} aux différents états :

$$|0\rangle \otimes |1_l\rangle = |0; 1_l\rangle \quad (4.3)$$

pour lesquels le système retourne dans son état fondamental en émettant un photon dans le mode l , caractérisé par une pulsation ω_l et un vecteur d'onde $\mathbf{k}_l = \mathbf{u}_l \omega_l/c$ où \mathbf{u}_l est un

vecteur unitaire. Pour que s'opère la transition du système de son état excité à son état fondamental, la pulsation du photon émis doit respecter la contrainte $E_1 = E_0 + \hbar\omega_l$, c'est à dire $\omega_l = \omega_0$ la fréquence de Bohr de la transition. Il n'existe en revanche aucune contrainte sur la direction du vecteur d'onde, il y a donc un continuum d'états finaux possibles.

4.1.1 Approche de Wigner-Weisskopf : durée de vie radiative

En négligeant tout processus de désexcitation associée à l'absorption d'un photon ou excitation associée à l'émission d'un photon, l'état du système à l'instant t s'écrit [59] :

$$|\psi(t)\rangle = C_0(t) |1_l; 0\rangle + \sum_l C_l(t) |0; 1_l\rangle \quad (4.4)$$

et le hamiltonien du système étant de la forme :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}(t) \quad (4.5)$$

l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = \hat{H} |\psi(t)\rangle \quad (4.6)$$

projetée sur les états propres de l'ensemble { système + champ } permet d'obtenir le système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} i\hbar \dot{C}_0(t) = \hbar\omega_0 C_0(t) + \sum_l W_l C_l(t) \\ i\hbar \dot{C}_l(t) = \hbar\omega_l C_l(t) + W_l^* C_0(t) \end{cases} \quad (4.7)$$

où nous avons posé :

$$W_l = \langle 1_l; 0 | \hat{H}_{int} | 0; 1_l \rangle = -i \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_l \quad (4.8)$$

avec \mathbf{E}_l le champ électrique associé au mode l et $\boldsymbol{\mu}$ le moment dipolaire de la transition du système à deux niveaux.

En utilisant les conditions initiales :

$$\begin{cases} C_0(0) = 1 \\ C_l(0) = 0 \end{cases} \quad (4.9)$$

la deuxième équation du système (4.7) s'intègre formellement en :

$$C_l(t) = -i \frac{W_l^*}{\hbar} \int_0^t C_0(t') e^{i\omega_l(t'-t)} dt' \quad (4.10)$$

ce qui nous permet de réécrire la première équation du système (4.7) sous la forme :

$$\dot{C}_0(t) = -i \omega_0 C_0(t) - \sum_l \frac{|W_l|^2}{\hbar^2} \int_0^t C_0(t') e^{i\omega_l(t'-t)} dt' \quad (4.11)$$

En faisant le changement de variable :

$$\mathfrak{C}_0(t) = C_0(t)e^{i\omega_0 t} \quad (4.12)$$

et en posant :

$$\mathcal{M}(\tau) = \sum_l \frac{|W_l|^2}{\hbar^2} e^{i(\omega_0 - \omega_l)\tau} \quad (4.13)$$

où $\tau = t - t'$, nous obtenons l'équation :

$$\dot{\mathfrak{C}}_0(t) = - \int_0^t \mathfrak{C}_0(t - \tau) \mathcal{M}(\tau) d\tau \quad (4.14)$$

La dérivée de $\mathfrak{C}_0(t)$ à l'instant t dépend donc des valeurs antérieures de $\mathfrak{C}_0(t)$ sur un intervalle temporel défini par la largeur de la fonction $\mathcal{M}(\tau)$ qui est de fait désignée par le terme de "fonction mémoire".

Une approche plus complète de la théorie quantique du rayonnement sortant du cadre de cette thèse, notons que [114] :

$$\dot{\mathfrak{C}}_0(t) \approx -\mathfrak{C}_0(t) \int_0^t \mathcal{M}(\tau) d\tau \approx -\mathfrak{C}_0(t) \int_0^\infty \mathcal{M}(\tau) d\tau \quad (4.15)$$

et posons :

$$\int_0^\infty \mathcal{M}(\tau) d\tau = \frac{\Gamma_{sp}}{2} + i \delta_l \quad (4.16)$$

où Γ_{sp} est le taux de relaxation causée par l'émission spontanée et $\delta_l = \omega_0 - \omega_l$, afin de trouver :

$$\mathfrak{C}_0(t) = \mathfrak{C}_0(0) e^{-\Gamma_{sp}t/2} e^{-i\delta_l t} = e^{-\Gamma_{sp}t/2} e^{-i\delta_l t} \quad (4.17)$$

d'où nous déduisons :

$$C_0(t) = e^{-\Gamma_{sp}t/2} e^{-i(\omega_0 + \delta_l)t} \quad (4.18)$$

La probabilité de trouver le système encore dans son état excité $|1\rangle$ au temps t est donc :

$$\mathcal{P}_1(t) = |C_0(t)|^2 = e^{-\Gamma_{sp}t} \quad (4.19)$$

Elle décroît donc exponentiellement avec un temps caractéristique $T_1 = 1/\Gamma_{sp}$, le temps de vie radiatif de l'état excité.

4.1.2 Relaxation du système par émission spontanée

Il est possible de déterminer l'évolution du système à deux niveaux en utilisant le formalisme de la matrice densité déjà introduit, mais en prenant cette fois en compte les états du rayonnement en estimant la trace partielle [59] :

$$\rho_{ss'} = \sum_R \langle s; R | \rho | s'; R \rangle \quad (4.20)$$

où les indices s et s' représentent l'état du système. Pour la population de l'état excité, il apparaît donc assez clairement que :

$$\rho_{11}(t) = |C_0(t)|^2 = e^{-\Gamma_{sp}t} \quad (4.21)$$

d'où l'équation d'évolution :

$$\dot{\rho}_{11}(t) = -\Gamma_{sp} \rho_{11}(t) = -\frac{1}{T_1} \rho_{11}(t) \quad (4.22)$$

De même, pour l'état fondamental $|0\rangle$, nous avons :

$$\dot{\rho}_{00}(t) = \Gamma_{sp} \rho_{11}(t) = \frac{1}{T_1} \rho_{11}(t) \quad (4.23)$$

En prenant uniquement en compte l'émission spontanée, le temps caractéristique de relaxation des populations est donc $T_1 = 1/\Gamma_{sp}$.

Pour les cohérences, il nous faut considérer un état initial différent de l'état excité, pour que les cohérences entrent en jeu, de la forme :

$$|\psi(0)\rangle = (\alpha |0\rangle + \beta |1\rangle) \otimes |0\rangle = \alpha |0;0\rangle + \beta |1;0\rangle \quad (4.24)$$

L'état du système au temps t s'écrit alors :

$$|\psi(t)\rangle = \alpha |0;0\rangle + \beta \left(C_0(t) |1;0\rangle + \sum_l C_l(t) |0;1_l\rangle \right) \quad (4.25)$$

puisque l'état $|0;0\rangle$ n'est pas couplé de manière résonnante au rayonnement et n'évolue donc pas. L'opérateur densité est alors de la forme :

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(t) &= |\psi(t)\rangle \langle \psi(t)| \\ &= |\alpha|^2 |0;0\rangle \langle 0;0| + |\beta|^2 |C_0(t)|^2 |1;0\rangle \langle 1;0| \\ &\quad + |\beta|^2 \sum_l (|C_l(t)|^2 |0;1_l\rangle \langle 0;1_l| + C_0(t)C_l^*(t) |1;0\rangle \langle 0;1_l| + C_0^*(t)C_l(t) |0;1_l\rangle \langle 1;0|) \\ &\quad + \alpha\beta^* \left(C_0^*(t) |0;0\rangle \langle 1;0| + \sum_l C_l^*(t) |0;0\rangle \langle 0;1_l| \right) \\ &\quad + \alpha^*\beta \left(C_0(t) |1;0\rangle \langle 0;0| + \sum_l C_l(t) |0;1_l\rangle \langle 0;0| \right) \end{aligned} \quad (4.26)$$

Nous remarquons qu'un seul terme de la somme :

$$\rho_{10}(t) = \sum_R \langle 1;R| \rho(t) |0;R\rangle \quad (4.27)$$

est non nul :

$$\rho_{10}(t) = \langle 1; 0 | (\alpha^* \beta C_0(t) | 1; 0 \rangle \langle 0; 0 | | 0; 0 \rangle = \alpha^* \beta C_0(t) \quad (4.28)$$

et de même :

$$\rho_{01}(t) = \langle 0; 0 | (\alpha \beta^* C_0^*(t) | 0; 0 \rangle \langle 1; 0 | | 1; 0 \rangle = \alpha \beta^* C_0^*(t) \quad (4.29)$$

Les cohérences $\rho_{10}(t)$ et $\rho_{01}(t)$ sont donc proportionnelles respectivement au coefficient $C_0(t)$ dont l'expression est de la forme (4.18) et à son complexe conjugué. Nous en déduisons leur évolution :

$$\dot{\rho}_{10}(t) = - \left(\frac{\Gamma_{sp}}{2} + i(\omega_0 + \delta_l) \right) \rho_{10}(t) = - \left(\frac{1}{T_2} + i(\omega_0 + \delta_l) \right) \rho_{10}(t) \quad (4.30)$$

et

$$\dot{\rho}_{01}(t) = - \left(\frac{\Gamma_{sp}}{2} - i(\omega_0 + \delta_l) \right) \rho_{01}(t) = - \left(\frac{1}{T_2} - i(\omega_0 + \delta_l) \right) \rho_{01}(t) \quad (4.31)$$

En prenant uniquement en compte l'émission spontanée, le temps caractéristique de relaxation des cohérences du système est donc, $T_2 = 2/\Gamma_{sp}$, soit :

$$T_2 = 2 T_1 \quad (4.32)$$

Le taux de relaxation des cohérences limité par l'émission spontanée est donc la moitié du taux de relaxation des populations, toujours par émission spontanée.

4.2 Mesures directes des temps de relaxation du système à deux niveaux

Commençons par nous intéresser aux mesures directes des durées caractéristiques des boîtes quantiques. Nous qualifions ces mesures de "directes" en opposition à celles présentées à la section suivante, réalisées par contrôle cohérent. En effet, ici nous excitons le système à deux niveaux et mesurerons d'une part la décroissance temporelle de la luminescence pour estimer le temps de vie de l'état excité du système, et d'autre part la largeur spectrale de la transition afin de déterminer son temps de cohérence.

4.2.1 Temps de vie

Les mesures directes de temps de vie sont réalisées en observant la décroissance temporelle de la luminescence, aussi bien sous excitation résonnante avec la transition que sous une excitation de plus haute énergie. Ces deux types d'excitation sont schématisées sur la figure (4.1).

Chaque impulsion d'énergie supérieure ou égale à celle de la transition fondamentale crée un exciton qui se recombine au bout d'un certain temps \mathcal{T} , en émettant un photon qui est alors détecté par la photo-diode à avalanche. En mesurant le nombre de photons

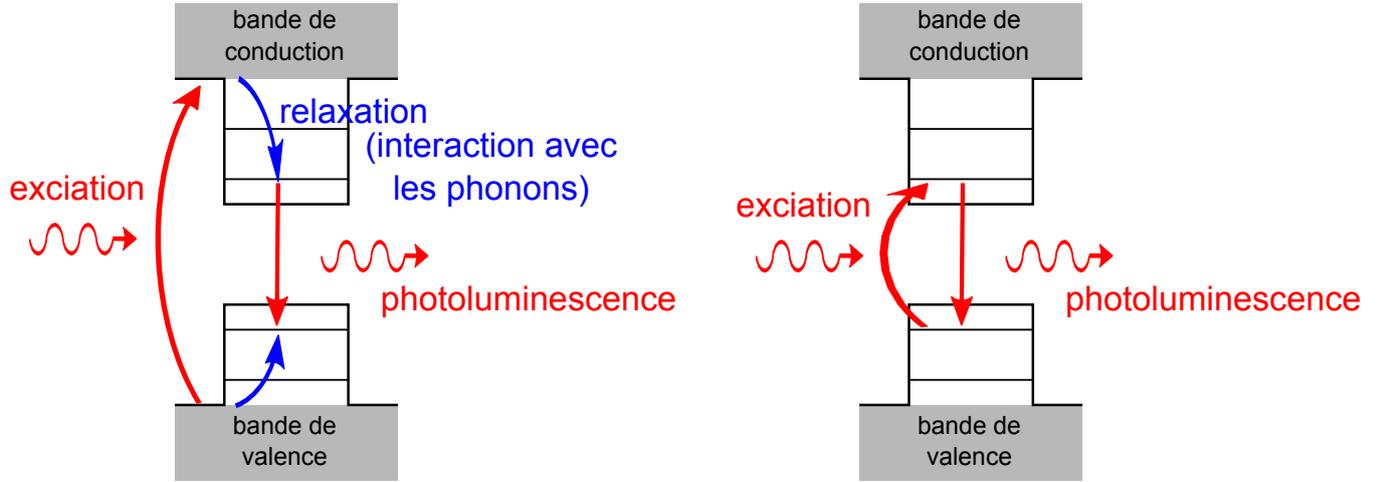


FIGURE 4.1 : Représentation des deux type d'excitation, à gauche excitation à haute énergie, à droite excitation résonnante avec la transition.

ainsi détectés pour chaque délai \mathcal{T} écoulé depuis le passage de l'impulsion, nous observons une décroissance exponentielle, convoluée avec la réponse du détecteur, comme celles représentées en échelle semi-logarithmique sur la figure (4.2). Le temps caractéristique de cette décroissance est le temps de vie effectif du système excitonique considéré. Il est obtenu, après avoir soustrait aux données brutes le bruit de fond, en ajustant nos données expérimentales au moyen d'une fonction du type [140] :

$$\mathcal{I}(t) = A e^{\left(\frac{\sigma^2}{2T_1^2} - \frac{t - t_0}{T_1}\right)} \left(1 - \text{Erf}\left(\frac{\sigma^2 - (t - t_0)T_1}{\sqrt{2}\sigma T_1}\right)\right) \quad (4.33)$$

A est l'amplitude du signal, t_0 l'origine des temps (correspondant à la fin de l'interaction du système avec l'impulsion) et σ le temps de réponse du détecteur (de l'ordre de 300 ps).

Sur la figure (4.2) est tracée en échelle semi-logarithmique la décroissance temporelle de la luminescence en fonction du temps, en noir dans le cas d'une excitation non résonnante (figure (4.1.a)) et en rouge dans le cas d'une excitation résonnante (figure (4.1.b)) avec la transition considérée. Nous remarquons alors que le temps de vie n'est pas le même dans les deux cas de figure, comme cela a déjà été observé par d'autres groupes, dont [141, 142]. De manière générale, nous trouvons un temps de vie sous excitation résonnante de l'ordre de la nanoseconde et variant peu d'une boîte à l'autre, tandis que le temps de vie sous excitation résonnante peut lui être compris entre 600 ps et 1 ns selon la boîte considérée.

Cette différence a été expliquée dans la thèse d'Alexandre Enderlin [19] par la prise en compte d'un système à quatre niveaux représentés sur la figure (4.3), où l'impulsion laser crée des porteurs de charge dans le réservoir $r(t)$ qui relaxe vers les excitons brillants

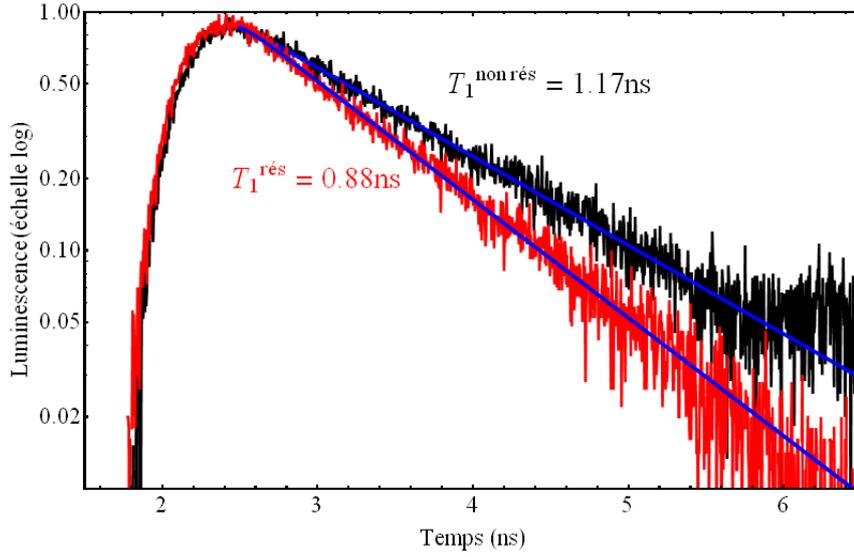


FIGURE 4.2 : Décroissance temporelle de la luminescence d'une boîte (en échelle semi-logarithmique), sous excitation résonnante (en rouge) et non résonnante (en bleu). L'ajustement des courbes au moyen de l'expression (4.33) permet de déterminer le temps de vie résonnant $T_1^{rés} = 880$ ps et non résonnant $T_1^{nonrés} = 1170$ ps.

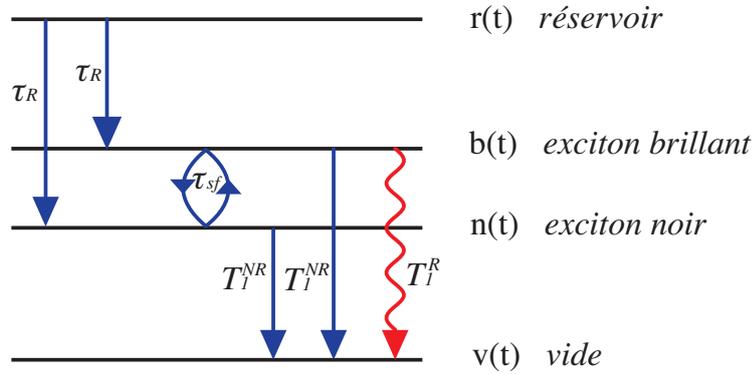


FIGURE 4.3 : Schéma du système à quatre niveaux modélisant l'excitation non résonnante d'une boîte quantique.

$b(t)$ et noirs $n(t)$ avec un temps de relaxation τ_R . Les excitons noirs peuvent alors, soit relaxer non radiativement vers le vide $v(t)$ avec un temps caractéristique T_1^{NR} , soit devenir brillants avec une probabilité $1/\tau_{sf}$ où τ_{sf} est le temps dit de "spinflip" au bout duquel le spin des électrons s'inverse, transformant ainsi les excitons noirs en excitons brillants et inversement. De même, les excitons brillants peuvent, soit devenir noirs par un processus de spinflip, soit se recombiner non radiativement avec un temps T_1^{NR} , soit se recombiner radiativement avec un temps caractéristique T_1^R qui correspond au temps de vie mesuré sous excitation résonnante. Les équations de taux de ce système à quatre niveaux per-

mettent alors d'ajuster les courbes expérimentales et de rendre compte de la différence de temps de vie entre le cas résonnant et le cas non résonnant, en particulier en raison de la contribution du temps τ_R de relaxation du réservoir.

D'autres explications sont cependant possibles, ainsi dans sa thèse, Hai Son Nguyen [142] justifie ces variations de temps de vie par la présence, hors résonance, d'un champ électrostatique local créé par porteurs de charges qui sont alors piégés au voisinage de la boîte. L'électron et le trou du système excitonique étant de charge opposée, ils ressentent alors différemment l'effet de ce champ parasite et le recouvrement des fonctions d'onde de la paire électron-trou diminue, et de ce fait la probabilité de recombinaison radiative également. Le temps de vie sous excitation non-résonnante est alors plus long que celui sous excitation résonnante, car dans ce dernier cas la transition est directement excitée et aucun porteur n'est piégé au voisinage de la boîte. Cette théorie s'appuie sur l'observation par Stavarache et al. [143] d'une augmentation du temps de vie radiatif d'une boîte quantique, lorsque celle-ci est soumise à un champ électrique appliqué latéralement.

Enfin, Romain Melet qui avait déjà observé cet effet sur les temps de vie dans des défauts d'interface, l'a lui attribué à l'effet de nos guides d'onde [18, 144]. Il se base pour cela sur la démonstration faite par Domokos et al. [145] que le couplage résonnant entre un système à deux niveaux et le mode optique d'un guide unidimensionnel induit de l'émission spontanée dans les modes du guide, celle-ci s'ajoutant à l'émission spontanée dans le vide.

En effet, définissons tout d'abord le facteur β comme le rapport entre l'intensité émise par un dipôle dans un mode optique donné et l'émission totale du dipôle :

$$\beta = \frac{I_{mode}}{I_{tot}} \quad (4.34)$$

Dans le cas d'un guide d'onde uni-dimensionnel, ce facteur dépend de la section s du mode, ainsi que de la direction du dipôle [146]. Considérons le taux d'émission Γ^{nonres} d'un dipôle situé dans un guide uni-dimensionnel monomode, au niveau du maximum du mode :

$$\Gamma^{nonres} = (1 - \beta)\Gamma_0 + \beta\Gamma_0 = \Gamma_0 \quad (4.35)$$

où Γ_0 est la probabilité par unité de temps d'émission dans le vide. La présence du guide n'a alors aucun effet sur le temps de vie radiatif.

Il n'en va pas de même lorsque le dipôle est excité de manière résonnante, en régime de couplage fort, par une impulsion de durée τ . Dans ce cas, le canal de désexcitation dans le mode du guide est "stimulé" par le couplage [145] et la probabilité d'émission dans le guide s'écrit :

$$\Gamma_{guide} = \Gamma_0 + \Gamma_1 \quad (4.36)$$

où Γ_1 représente le taux d'émission dans le guide, engendré par le couplage fort à la résonance. La probabilité d'émission totale devient alors :

$$\Gamma^{res} = (1 - \beta)\Gamma_0 + \beta(\Gamma_0 + \Gamma_1) = \Gamma_0 + \beta\Gamma_1 \quad (4.37)$$

β étant positif, nous avons donc toujours $\Gamma^{res} > \Gamma^{nonres}$, soit $T_1^{res} < T_1^{nonres}$, ce qui a systématiquement été observé, aussi bien dans les échantillons examinés au cours de cette thèse que dans les défauts d'interface de fils quantiques [144].

Comme le montre (4.37), cet effet dépend à la fois du paramètre β , donné par la géométrie du guide d'onde, et du paramètre Γ_1 qui dépend lui du couplage entre l'impulsion lumineuse et le dipôle. Nous comprenons donc comment, pour un même guide, nous mesurons des temps de vie résonnants différents pour chaque boîte, tandis que leur temps de vie non résonnant est toujours assez semblable. Ce couplage peut se mettre sous la forme [147] :

$$\Gamma_1 = \frac{f_0 (\sigma_{eff}/s)}{2 \tau} \quad (4.38)$$

où σ_{eff} est la section efficace, reliée au moment dipolaire de la transition, et $f_0 (\sigma_{eff}/s)$ définit le facteur de "remplissage" du dipôle dans le guide [148], f_0 ne dépendant que de la position du dipôle dans le mode et valant 1 au centre de celui-ci. Ainsi dans nos structures, le facteur de remplissage au centre du mode étant typiquement compris entre 10^{-2} et 10^{-3} et le facteur β étant de l'ordre de 0.1 [106], nous obtenons pour une impulsion de 2 ps et un temps de vie non résonnant de 1 ns :

$$500 \text{ ps} < T_1^{res} < 900 \text{ ps} \quad (4.39)$$

ce qui correspond bien à l'ordre de grandeur de nos mesures expérimentales.

Nous voyons ainsi que le couplage fort au guide d'onde change le temps de vie radiatif des boîtes quantiques. Cet effet n'est pas un effet linéaire semblable à l'effet Purcell, mais un effet non linéaire spécifique au couplage d'un dipôle avec un champ électromagnétique impulsionnel, guidé dans une structure uni-dimensionnelle.

Temps de vie en fonction de la puissance d'excitation

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que la modélisation de certaines courbes d'oscillation de Rabi nécessite l'introduction d'un terme de fuite de population proportionnel à la puissance d'excitation. Nous nous attendons donc à une diminution du temps de vie en fonction de cette puissance. En effet, sur la figure (4.4) est représentée pour deux boîtes différentes la décroissance temporelle de la luminescence en fonction de la puissance d'excitation, et si dans la majorité des cas nous observons une faible diminution du temps de vie, comme illustré sur la figure (4.4.a), pour les boîtes nécessitant l'introduction du

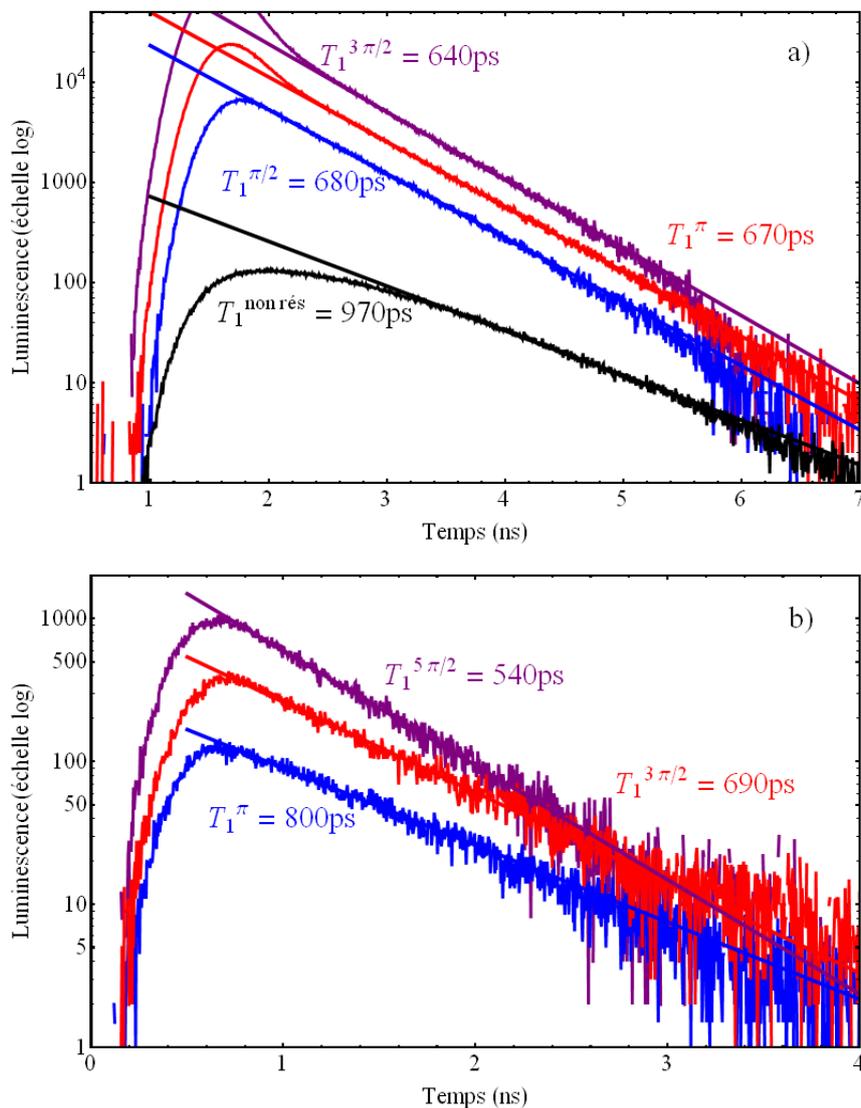


FIGURE 4.4 : Décroissance temporelle de la luminescence pour différentes puissances d'excitation.

terme de relaxation de population supplémentaire, nous observons bien une rapide diminution du temps de vie à mesure que la puissance d'excitation augmente, comme nous le voyons sur la figure (4.4.b). La figure (4.5) représente ainsi le temps de vie en fonction de la puissance d'excitation, pour les deux dernières boîtes considérées dans la figure (4.4). En ajustant les courbes expérimentales au moyen d'une expression du type :

$$T_1^\theta = \frac{T_1}{1 + T_1 \alpha' \mathcal{P}} \quad (4.40)$$

où T_1 est la composante du temps de vie indépendante de la puissance et α' un paramètre d'ajustement, nous trouvons pour la première boîte $T_1 = 685 \text{ ps}$ et pour la seconde $T_1 =$

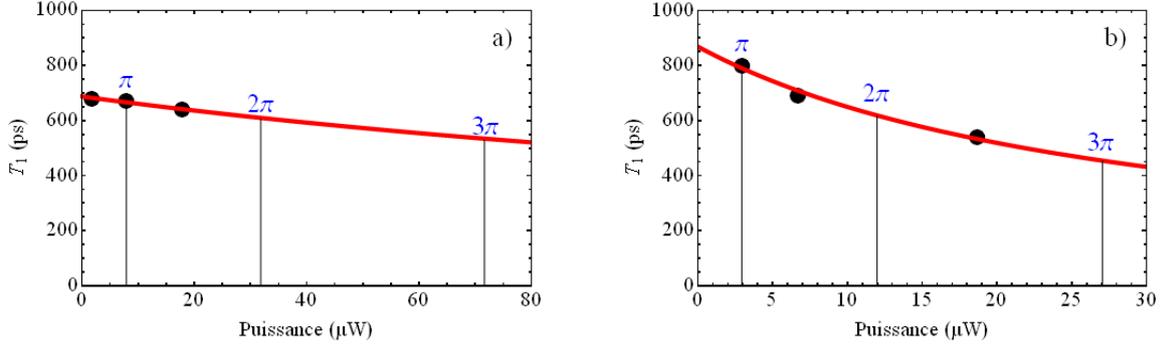


FIGURE 4.5 : Évolution du temps de vie en fonction de la puissance d'excitation.

870 ps. Nous voyons ainsi sur la figure (4.5.b) que le temps de vie pour la seconde boîte qui était de 800 ps pour une impulsion π n'est plus que de 450 ps pour une impulsion 3π et de 240 ps pour une impulsion 5π . Cette évolution du temps de vie, inversement proportionnelle à la puissance d'excitation semble valider la dépendance en Ω_R^2 du terme de fuite introduit au chapitre précédent de manière phénoménologique dans les équations de Bloch optiques, en remplaçant $1/T_1$ par $1/T_1 + \alpha\Omega_R^2$.

Notons que sur la figure (4.4), nous avons fait figurer en noir la décroissance temporelle pour une excitation non résonnante et avons une fois de plus trouvé $T_1^{nonres} = 970$ ps $>$ $T_1^{res} = 680$ ps.

4.2.2 Temps de cohérence

La luminescence émise lors de la recombinaison excitonique n'est en réalité pas exactement monochromatique et les raies d'émission des boîtes quantiques présentent un élargissement homogène, leur profil étant ainsi décrit par une fonction spectrale $g_\omega(\omega)$, centrée en $\omega_0 = (E_1 - E_0)/\hbar$ et de largeur à mi-hauteur $\Delta\omega$. En effet, en raison des fluctuations du vide, tout système à deux niveaux préalablement excité retourne dans son état fondamental en émettant spontanément un photon, le taux de cette émission spontanée étant donné par le coefficient A d'Einstein, qui détermine le temps de vie radiatif T_1 de l'état excité [149, 150]. En raison du principe d'incertitude d'Heisenberg :

$$\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar \quad (4.41)$$

le temps de vie fini de l'état excité du système conduit à un élargissement spectral :

$$\Delta\omega = \frac{\Delta E}{\hbar} \geq \frac{1}{T_1} \quad (4.42)$$

Le profil exact de la raie d'émission correspondant à la transition de pulsation ω_0 peut s'obtenir par la transformée de Fourier d'une exponentielle décroissante de durée

caractéristique T_1 . En effet, l'intensité de la luminescence lorsque l'excitation du système cesse en $t = 0$ peut s'écrire :

$$I(t) = I(t = 0) e^{-t/T_1} \quad (4.43)$$

et le champ électrique correspondant est du type :

$$\mathcal{E}(t) = \mathcal{E}_L \cos(\omega_0 t) e^{-t/2T_1} \quad (4.44)$$

La transformée de Fourier du champ a ainsi pour expression :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}_L \cos(\omega_0 t) e^{-t/2T_1} e^{i\omega t} dt \\ &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{+\infty} \mathcal{E}_L \left(\frac{e^{i\omega_0 t} + e^{-i\omega_0 t}}{2} \right) e^{-t/2T_1} e^{i\omega t} dt \\ &= \frac{\mathcal{E}_L}{2\sqrt{2\pi}} \left(\frac{-1}{i(\omega + \omega_0) - 1/2T_1} + \frac{-1}{i(\omega - \omega_0) - 1/2T_1} \right) \end{aligned} \quad (4.45)$$

où comme $\omega_0 \ll 1/T_2$ le premier terme peut être négligé par rapport au second. Il reste alors :

$$I(\omega) = |\mathcal{E}(\omega)|^2 \approx \frac{\mathcal{E}_L^2}{8\pi} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + (1/2T_1)^2} \quad (4.46)$$

Nous reconnaissons ici l'expression d'une fonction lorentzienne de largeur à mi hauteur $1/T_1$ et nous pouvons écrire le profil spectral des raies de luminescence sous la forme [22] :

$$g_\omega(\omega) = \frac{\Delta\omega/2\pi}{(\omega - \omega_0)^2 + (\Delta\omega/2)^2} \quad (4.47)$$

avec $\Delta\omega = 1/T_1$.

Nous venons de voir comment l'émission spontanée est en théorie responsable de l'élargissement spectral de la raie d'émission d'un système à deux niveaux. Cependant, dans un système réel, tel que les boîtes quantiques, l'interaction du système avec son environnement engendre une perte de cohérence au bout d'un temps T_2 inférieur à sa limite radiative ($T_2 < 2T_1$). En effet de manière qualitative, nous comprenons bien que les cohérences sont plus sensibles à l'action d'une perturbation extérieure que les populations car il est plus facile de brouiller la phase de l'oscillation du moment dipolaire moyen que de changer l'énergie du système. Cette perte de cohérence est alors responsable d'un élargissement homogène des raies d'émission des boîtes, dont la largeur à mi-hauteur est donnée par :

$$\frac{\Delta E}{\hbar} = \Delta\omega = \frac{2}{T_2} \quad (4.48)$$

Nous pouvons démontrer ce résultat sachant que le champ rayonné par la boîte est proportionnel à la dérivée temporelle seconde du moment dipolaire moyen [59] qui s'écrit,

dans le formalisme de la matrice densité :

$$\begin{aligned}
\langle \boldsymbol{\mu} \rangle &= \text{Tr}(\rho \boldsymbol{\mu}) \\
&= \text{Tr} \begin{pmatrix} \rho_{10}(t) \boldsymbol{\mu}_{01} & \rho_{11}(t) \boldsymbol{\mu}_{10} \\ \rho_{00}(t) \boldsymbol{\mu}_{01} & \rho_{01}(t) \boldsymbol{\mu}_{10} \end{pmatrix} \\
&= \boldsymbol{\mu}_{10} (\rho_{01}(t) + \rho_{10}(t))
\end{aligned} \tag{4.49}$$

d'où :

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}(t) \propto \langle \dot{\boldsymbol{\mu}} \rangle = \boldsymbol{\mu}_{10} (\dot{\rho}_{01}(t) + \dot{\rho}_{10}(t)) \tag{4.50}$$

Or nous avons déterminé dans les équations (4.30) et (4.31) qu'en prenant $\delta_l = 0$, nous avons :

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{10}(t) = - \left(\frac{1}{T_2} + i\omega_0 \right) \rho_{10}(t) \\ \dot{\rho}_{01}(t) = - \left(\frac{1}{T_2} - i\omega_0 \right) \rho_{01}(t) \end{cases} \tag{4.51}$$

soit :

$$\begin{cases} \rho_{10}(t) = e^{-(i\omega_0 + 1/T_2)t} \\ \rho_{01}(t) = e^{-(-i\omega_0 + 1/T_2)t} \end{cases} \tag{4.52}$$

d'où :

$$\boldsymbol{\mathcal{E}}(t) \propto \boldsymbol{\mu}_{10} \left[\left(\frac{1}{T_2} + i\omega_0 \right)^2 e^{-(i\omega_0 + 1/T_2)t} + \left(\frac{1}{T_2} - i\omega_0 \right)^2 e^{-(-i\omega_0 + 1/T_2)t} \right] \tag{4.53}$$

En se rappelant que $\Omega_R = \boldsymbol{\mu} \cdot \boldsymbol{\mathcal{E}} / \hbar$, la transformée de Fourier du champ a ainsi pour expression :

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}(\omega) &\propto \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega_R \left[\left(\frac{1}{T_2} + i\omega_0 \right)^2 e^{-(i\omega_0 + 1/T_2)t} + \left(\frac{1}{T_2} - i\omega_0 \right)^2 e^{-(-i\omega_0 + 1/T_2)t} \right] e^{i\omega t} dt \\
&\propto \Omega_R \left(\frac{-(i\omega_0 + 1/T_2)^2}{i(\omega + \omega_0) - 1/T_2} + \frac{-(-i\omega_0 + 1/T_2)^2}{i(\omega - \omega_0) - 1/T_2} \right)
\end{aligned} \tag{4.54}$$

Comme $\omega_0 \ll 1/T_1$ le premier terme peut être négligé par rapport au second. Il reste alors [59] :

$$I(\omega) = |\mathcal{E}(\omega)|^2 \propto \Omega_R^2 \frac{\omega_0^2 + 1/T_2^2}{(\omega - \omega_0)^2 + (1/T_2)^2} \tag{4.55}$$

Nous reconnaissons ici l'expression d'une fonction lorentzienne de largeur à mi hauteur $2/T_2$. L'estimation de la largeur des raies de luminescence permet donc d'évaluer le temps de cohérence du système excitonique étudié.

Ces raies étant d'une largeur moyenne de $3 \mu eV$ (soit $T_2 \approx 450 ps$), nous ne pouvons pas mesurer leur largeur avec notre dispositif expérimental d'une résolution de $45 \mu eV$.

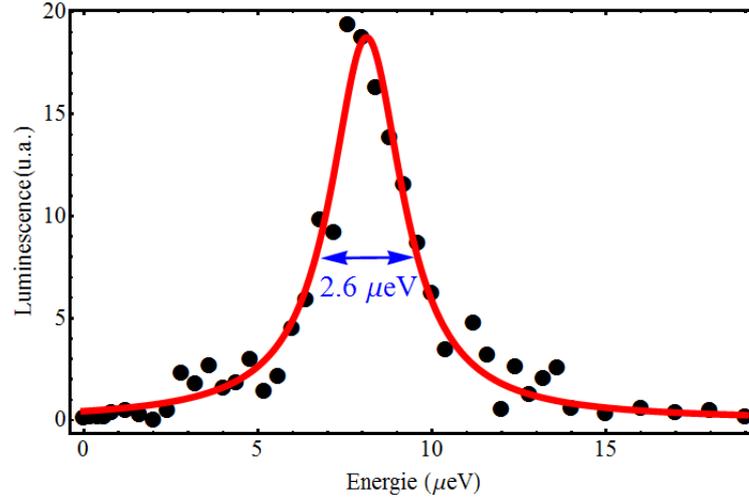


FIGURE 4.6 : Raie de luminescence de la transition fondamentale d'une boîte quantique, résolue à l'aide de l'interféromètre de Fabry-Pérot. L'ajustement numérique des points expérimentaux par une fonction lorentzienne permet de déterminer une largeur à mi-hauteur de $2.6 \mu\text{eV}$, soit un temps de cohérence de 500 ps .

Pour le faire, il nous faut donc insérer sur le chemin de détection un interféromètre de Fabry-Pérot avant la fente d'entrée du spectromètre. La figure (4.6) montre un exemple, où nous mesurons une largeur de raie de $\Delta E = 2.6 \mu\text{eV}$ correspondant à un temps de cohérence $T_2 = 2\hbar/\Delta E = 500 \text{ ps}$.

De manière générale, les temps de cohérence trouvés pour une excitation non résonnante, sont compris entre 300 ps et 500 ps , avec en moyenne $\langle T_2^{\text{nonres}} \rangle = 400 \text{ ps}$, tandis que ceux obtenus sous excitation résonnante avec la transition fondamentale considérée sont compris entre 200 ps et 600 ps , avec une moyenne de $\langle T_2^{\text{res}} \rangle = 300 \text{ ps}$. Nous n'avons cependant jamais étudié une boîte à la fois sous excitation résonnante et non résonnante et ne pouvons tirer de conclusion quant à l'évolution du temps de cohérence en fonction de l'énergie d'excitation. Toutefois la tendance qui semble se dessiner d'après les valeurs moyennes que nous avons mesurées, va à l'encontre de ce qui a été observé sous excitation continue [142, 151, 152]. En effet, l'étude de la largeur spectrale des raies de luminescence a toujours montré une augmentation de la cohérence à mesure que l'énergie d'excitation s'approchait de l'énergie de résonance de la transition. Ce phénomène a souvent été expliqué par la création, sous excitation non résonnante, de porteurs de charge dans l'environnement des boîtes, qui interagissent de façon coulombienne avec les porteurs contenus dans les boîtes, induisant ainsi un déphasage supplémentaire [151]. En considérant que sous excitation résonnante, seule l'émission spontanée est responsable du temps de vie, nous voyons que les temps de cohérence mesurés dans nos systèmes sont donc très inférieurs à la limite radiative de $2 T_1^{\text{res}} = 2 \times 650 \text{ ps}$. Cela semble indiquer la présence de processus

de déphasage pur qui changent la phase du système, sans en modifier l'énergie. Ils seront détaillés à la fin de ce chapitre dans la partie 4.4.

4.3 Contrôle cohérent

4.3.1 Interaction d'un système à deux niveaux avec deux impulsions successives

Le contrôle cohérent est de manière générale la manipulation de l'état d'un système à deux niveaux, durant son temps de cohérence, au moyen d'impulsions lumineuses résonnantes avec la transition [153, 154, 155, 156, 157]. Dans les expériences que nous avons réalisées, nous avons commencé par initialiser l'état du système dans une superposition cohérente de notre choix, au moyen d'une première impulsion dont l'aire a été sélectionnée en utilisant la courbe d'oscillations de Rabi préalablement obtenue. Cependant, en raison du temps de cohérence et du temps de vie finis de la superposition cohérente initiale, le système ne conservera l'état dans lequel il a été préparé que pendant une durée limitée. Nous utilisons donc une seconde impulsion qui, au bout d'un délai δ après la première, interagit à son tour avec le système, afin de sonder la durée de cohérence du système. En effet, en connaissant l'aire et le déphasage relatif des deux impulsions, nous pouvons prévoir l'état du système après la seconde impulsion, et toute observation différente des prévisions témoigne d'une perte de cohérence.

Le principe de la mesure est schématisé figure (4.7), où nous avons représenté l'évolution temporelle de la population de l'état excité σ_{11} , qui après une interaction presque instantanée avec une première impulsion subit des processus de relaxation, avant d'interagir de manière quasi-instantanée avec une seconde impulsion qui va modifier son état, avant que celui-ci relaxe à nouveau.

4.3.1.a Interaction du système à deux niveaux avec la première impulsion

Commençons par nous intéresser à la préparation de l'état du système à deux niveaux, initialement dans son état fondamental :

$$|\psi(t = 0^-)\rangle = |0\rangle \quad (4.56)$$

à l'aide d'une première impulsion résonnante ($\delta_L = 0$) de la forme :

$$\mathbf{E}_1(t) = \mathcal{E}_1 \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau}\right) \cos(\omega_0 t) \quad (4.57)$$

d'aire $\theta_1 = \int \Omega_1$, interagissant avec lui au temps $t = 0$. Au cours de cette interaction, l'état du système évolue selon les équations de Bloch optiques, pour lesquelles en raison de la

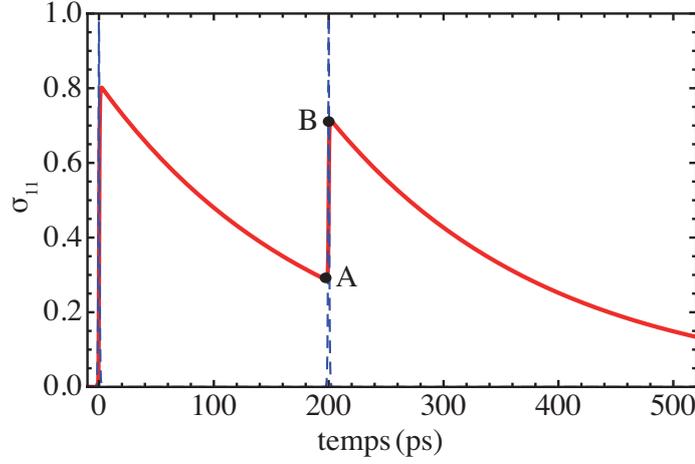


FIGURE 4.7 : Population de l'état excité σ_{11} , représentée en rouge, en fonction du temps, pour un système à deux niveaux interagissant successivement avec deux impulsions de même aire quelconque, représentées en bleu, séparées par un délai $\delta = 200$ ps.

faible durée de l'impulsion, nous pouvons négliger les processus de relaxation :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i\frac{\Omega_1(t)}{2}(\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = +i\frac{\Omega_1(t)}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) \end{cases} \quad (4.58)$$

Au cours d'une impulsion d'aire θ_1 , un système initialement dans son état fondamental, voit le population de son état excité évoluer selon :

$$\sigma_{11}(t) = -\frac{1}{2} \cos(\theta_1(t)) + \frac{1}{2} = \sin^2\left(\frac{\theta_1(t)}{2}\right) \quad (4.59)$$

Lorsque l'excitation cesse (en $t = 0^+$), le système est alors laissé dans une superposition cohérente décrite par le vecteur d'état :

$$|\psi(t = 0^+)\rangle = \cos\left(\frac{\theta_1}{2}\right) |0\rangle - i \sin\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-i\omega_0 0^+} |1\rangle \quad (4.60)$$

dépendant uniquement de l'aire totale θ_1 de l'impulsion.

En utilisant le formalisme de la matrice densité $\rho = |\psi\rangle\langle\psi|$, il est également possible d'écrire l'état du système avant (en $t = 0^-$) et immédiatement après son interaction avec la première impulsion (en $t = 0^+$) sous la forme :

$$\rho(t = 0^-) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (4.61)$$

et

$$\rho(t = 0^+) = \begin{pmatrix} \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) & -i\frac{\sin\theta_1}{2}e^{-i\omega_0 0^+} \\ i\frac{\sin\theta_1}{2}e^{i\omega_0 0^+} & \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \end{pmatrix} \quad (4.62)$$

Une fois l'impulsion finie, le système évolue librement jusqu'à l'arrivée de la seconde impulsion et son évolution temporelle, en l'absence de rayonnement, est donnée uniquement par la matrice de relaxation, soit :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{\hat{\sigma}_{10}(t)}{T_2} \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = -\frac{\hat{\sigma}_{01}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (4.63)$$

L'intégration de ce système d'équations nous permet alors d'obtenir l'expression de la matrice densité du système entre les deux impulsions (pour $0^+ < t < \delta^-$, l'instant d'arrivée de la seconde impulsion) :

$$\rho(t) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(0^+) e^{-t/T_1} & \sigma_{10}(0^+) e^{-i\omega_0 t} e^{-t/T_2} \\ \sigma_{01}(0^+) e^{i\omega_0 t} e^{-t/T_2} & 1 - \sigma_{11}(0^+) e^{-t/T_1} \end{pmatrix} \quad (4.64)$$

L'état du système, immédiatement avant son interaction avec la seconde impulsion, arrivant avec un retard δ par rapport à la première, est alors représentée par la matrice densité :

$$\rho(\delta^-) = \begin{pmatrix} \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} & -i e^{-i\omega_0 \delta^-} \frac{\sin\theta_1}{2} e^{-\delta^-/T_2} \\ i e^{i\omega_0 \delta^-} \frac{\sin\theta_1}{2} e^{-\delta^-/T_2} & 1 - \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} \end{pmatrix} \quad (4.65)$$

4.3.1.b Interaction du système à deux niveaux avec la seconde impulsion

Au bout d'une durée δ écoulée depuis la première impulsion, le système dans l'état (4.65) interagit avec la seconde impulsion, elle aussi résonnante avec la transition, de la forme :

$$\mathbf{E}_2(t) = \mathcal{E}_2 \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau}\right) \cos(\omega_0 t + \phi) \quad (4.66)$$

d'aire $\theta_2 = \int \Omega_2$ et déphasée de ϕ par rapport à la première impulsion. L'évolution au cours de cette interaction est donné par les équations de Bloch optiques (4.58). Utilisons,

comme nous l'avons fait au chapitre précédent, les composantes du vecteur de Bloch :

$$\begin{cases} u(t) = \frac{1}{2}(\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ v(t) = \frac{1}{2i}(\hat{\sigma}_{01}(t) - \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ w(t) = \frac{1}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \end{cases} \quad (4.67)$$

qui nous permettent, en tenant compte de la condition de normalisation $\sigma_{00} + \sigma_{11} = 1$, de réécrire les équations de Bloch sous la forme :

$$\begin{cases} \dot{u}(t) = 0 \\ \dot{v}(t) = -\Omega_2(t) w(t) \\ \dot{w}(t) = \Omega_2(t) v(t) \end{cases} \quad (4.68)$$

En utilisant les conditions initiales exprimées dans la matrice densité (4.65) :

$$\begin{cases} \sigma_{11}(\delta^-) = \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} \\ \hat{\sigma}_{10}(\delta^-) = \sigma_{01}(\delta^-) e^{-i(\omega_0 t + \phi)} = -i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{i\phi} e^{-\delta^-/T_2} \\ \hat{\sigma}_{01}(\delta^-) = \sigma_{10}(\delta^-) e^{i(\omega_0 t + \phi)} = i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-i\phi} e^{-\delta^-/T_2} \end{cases} \quad (4.69)$$

la première de ces équations s'intègre en :

$$u(t) = \text{constante} = u(\delta^-) = \frac{1}{2} \left(i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-\delta^-/T_2} - i \frac{\sin \theta_1}{2} e^{-\delta^-/T_2} \right) = 0 \quad (4.70)$$

Or, en l'absence d'amortissement, nous savons que le module du vecteur de Bloch :

$$u^2(t) + v^2(t) + w^2(t) = v^2(t) + w^2(t) \quad (4.71)$$

est constant, d'où :

$$v^2(t) + w^2(t) = v^2(\delta^-) + w^2(\delta^-) = \left[\frac{\sin \theta_1}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right]^2 + \left[\sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right]^2 \quad (4.72)$$

Il est donc possible de définir un angle $\theta(t)$ tel que :

$$\begin{cases} v(t) = \left[\frac{\sin \theta_1}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right] \cos(\theta(t)) - \left[\sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \sin(\theta(t)) \\ w(t) = \left[\frac{\sin \theta_1}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right] \sin(\theta(t)) + \left[\sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos(\theta(t)) \end{cases} \quad (4.73)$$

que nous allons relier à la pulsation de Rabi $\Omega_2(t)$ en dérivant les deux équations (4.73) par rapport au temps :

$$\begin{cases} \dot{v}(t) = -\dot{\theta}(t) w(t) \\ \dot{w}(t) = \dot{\theta}(t) v(t) \end{cases} \quad (4.74)$$

En identifiant dans les équations de Bloch (4.68) $\dot{\theta}(t) = \Omega_2(t)$, nous obtenons :

$$\theta(t) = \int_{\delta^-}^t \Omega_2(t') dt' = \theta_2(t) = \frac{2}{\pi} \theta_2 \left[\frac{\pi}{4} - \arctan(\tanh(\frac{t}{\tau})) \right] \quad (4.75)$$

Sachant qu'en raison de la condition de normalisation $\sigma_{00}(t) + \sigma_{11}(t) = 1$, nous avons :

$$\sigma_{11}(t) = w(t) + \frac{1}{2} \quad (4.76)$$

nous déterminons l'expression de l'évolution temporelle de l'état excité au cours de la seconde impulsion :

$$\sigma_{11}(t) = \frac{1}{2} + \left[\frac{\sin \theta_1}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right] \sin(\theta_2(t)) + \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos(\theta_2(t)) \quad (4.77)$$

De même, étant donné que nous avons montré qu'à la résonance $u(t) = 0$, nous trouvons :

$$\sigma_{01}(t) = -\sigma_{10}(t) = i v(t) \quad (4.78)$$

d'où :

$$\hat{\sigma}_{01}(t) = i \left[\frac{\sin \theta_1}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right] \cos(\theta_2(t)) - \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - i \frac{1}{2} \right] \sin(\theta_2(t)) \quad (4.79)$$

La population du niveau excité immédiatement après l'interaction du système avec la seconde impulsion a donc pour expression :

$$\sigma_{11}(\delta^+) = \frac{1}{2} + \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos \theta_2 + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta^-/T_2} \cos \phi \right] \sin \theta_2 \quad (4.80)$$

Les deux premiers termes peuvent s'écrire :

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} + \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos \theta_2 \\ &= \frac{1}{2} + \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \left(1 - 2 \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \right) \\ &= \frac{1}{2} + \sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - 2 \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} + \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \\ &= \sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \left(1 - \cos^2(\frac{\theta_1}{2}) \right) e^{-\delta^-/T_1} + \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \\ &= \sin^2(\frac{\theta_1}{2}) e^{-\delta^-/T_1} - \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \left[\sin^2(\frac{\theta_1}{2}) - \cos^2(\frac{\theta_1}{2}) \right] e^{-\delta^-/T_1} - \sin^2(\frac{\theta_2}{2}) \left(1 - e^{-\delta^-/T_1} \right) \end{aligned} \quad (4.81)$$

Nous reconnaissons alors :

- la population de l'état excité juste avant l'interaction du système avec la seconde impulsion (au temps δ^-) :

$$\sigma_{11}(\delta^-, \theta_1) = \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} \quad (4.82)$$

- l'inversion de population immédiatement après l'interaction du système avec la première impulsion :

$$2 w(0^+) = \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) - \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \quad (4.83)$$

- l'inversion de population juste avant l'interaction du système avec la seconde impulsion :

$$2 w(\delta^-) = \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} - \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) (1 - e^{-\delta^-/T_1}) \quad (4.84)$$

L'expression (4.80) peut donc être réarrangée sous la forme :

$$\sigma_{11}(\delta^+, \theta_1, \theta_2, \phi) = \sigma_{11}(\delta^-, \theta_1) \quad (4.85)$$

$$-2 \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) w(\delta^-) \quad (4.86)$$

$$+\frac{1}{2} \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \quad (4.87)$$

Le premier terme (4.85) prend en compte l'état du système avant son interaction avec la seconde impulsion, c'est donc l'état que celle-ci va manipuler. Il correspond au point *A* de coordonnées $(\delta^-, \sigma_{11}(\delta^-))$ sur la figure (4.7). Les deux autres termes traduisent l'effet de l'interaction, et sont responsables, figure (4.7), du passage quasi-instantané de la population du point *A* au point *B*. Dans ces deux termes d'interaction, nous pouvons distinguer la contribution "incohérente" apportée par (4.86), de celle "cohérente" du dernier terme (4.87), qui dépend du déphasage relatif ϕ entre les deux impulsions, donc du déphasage entre la seconde impulsion et l'oscillation du moment dipolaire moyen de la transition. Analysons plus précisément ces deux termes.

Terme (4.86) : interaction incohérente (absorption et émission stimulée)

Le terme (4.86) correspond à la partie incohérente de l'interaction. Elle est proportionnelle à l'inversion de population, $2 w(\delta^-) = \sigma_{11}(\delta^-) - \sigma_{00}(\delta^-)$, au temps $t = \delta^-$. Cette contribution traduit donc la compétition entre, d'une part le processus d'absorption d'un photon, proportionnel à la population du niveau fondamental $\sigma_{00}(\delta^-)$, et d'autre part le processus inverse d'émission stimulée d'un photon, proportionnel à la population du niveau excité $\sigma_{11}(\delta^-)$. Le facteur $\sin^2(\theta_2/2)$ permet quant à lui de tenir compte de l'effet de l'aire de la seconde impulsion dans l'amplitude de ces processus.

Pour mieux comprendre ce terme, exprimons-le en faisant apparaître l'inversion de population $2 w(0^+)$ de l'état préparé initialement :

$$\begin{aligned} 2 \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) w(\delta^-) &= \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) \left[\sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) - \cos^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \right] e^{-\delta^-/T_1} + \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) (1 - e^{-\delta^-/T_1}) \\ &= 2 \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) w(0^+) e^{-\delta^-/T_1} + \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) (1 - e^{-\delta^-/T_1}) \end{aligned} \quad (4.88)$$

Au sortir de la première impulsion, le système est préparé dans l'état $\rho(0^+)$, pour lequel l'inversion de population est de $2 w(0^+)$. Cependant, en raison des processus de relaxation, à l'instant δ^- il a une probabilité $e^{-\delta^-/T_1}$ d'avoir relaxé vers l'état fondamental, et donc une probabilité $(1 - e^{-\delta^-/T_1})$ de ne pas avoir relaxé.

Si nous raisonnons en terme d'évènement unique, deux cas de figure se présentent lors de l'interaction du système avec la seconde impulsion. Si le système a relaxé vers son état fondamental, la seconde impulsion a pour effet de l'exciter de nouveau par absorption d'un photon, tandis que si ce n'est pas le cas, elle a pour effet de stimuler l'émission d'un photon, faisant passer le système dans son état fondamental.

Reprenons notre raisonnement en terme de population. Dans le premier cas, la seconde impulsion repeuple le niveau excité avec un facteur dépendant de l'aire de l'impulsion et s'exprimant sous la forme $\sin^2(\theta_2/2)$, comme cela apparait dans le premier terme de (4.88). Dans le second cas, elle repeuple l'état fondamental avec un facteur dépendant de l'aire de l'impulsion et s'exprimant de nouveau sous la forme $\sin^2(\theta_2/2)$, comme cela apparait dans le second terme de (4.88).

Nous voyons donc comment lors de l'interaction du système avec la seconde impulsion, deux mécanismes opposés se concurrencent, à savoir l'absorption et l'émission stimulée. L'état du système à l'issue de son interaction avec la seconde impulsion dépend donc, pour une seconde impulsion d'aire θ_2 donnée, de l'état $2 w(0^+)$ dans lequel l'a préparé la première impulsion et du temps δ écoulée depuis celle-ci.

Terme (4.87) : Interaction cohérente

Le terme (4.87) tient lui compte de la partie cohérente de l'interaction entre la seconde impulsion et le système dans l'état $\rho(\delta^-)$. Le mot "cohérence" est ici employé car l'interaction donne lieu à un phénomène d'interférence entre le champ électrique incident et le dipôle oscillant de l'état $\rho(\delta^-)$. Cela se traduit par la présence du facteur $\cos \phi$ qui dépend du déphasage relatif ϕ entre les deux impulsions, donc du déphasage entre la seconde impulsion et l'oscillation du dipôle créé par la première

Si nous raisonnons de nouveau en terme d'évènement unique, lors de l'interaction du système avec la première impulsion, celle-ci a excité le système et ainsi créé un dipôle oscillant auquel elle a transmis sa phase. Cependant, en raison de processus de relaxation, il ne conserve cette phase que durant un temps moyen T_2 , le temps de cohérence du système au delà duquel se produit un saut de phase aléatoire. Si la seconde impulsion interagit à son tour avec le système au bout d'un délai $\delta > T_2$, il est alors impossible de prévoir le déphasage entre celle-ci et le dipôle et donc le résultat de l'interaction. En effet, nos mesures sont des moyennes sur un grand nombre de réalisations. Lorsque les deux impulsions sont très rapprochées l'une de l'autre, pour un déphasage ϕ donné entre les deux impulsions, la grande majorité des réalisations auront la même issue et nous serons capables d'observer des interférences constructives ou destructives en fonction de la phase ϕ choisie. En revanche, lorsque les deux impulsions sont séparées temporellement d'un délai supérieur au temps de cohérence, chaque réalisation aura un résultat aléatoire et différent, et la moyenne sur l'ensemble des réalisations sera une valeur constante, quelle que soit le déphasage ϕ choisi entre les deux impulsions, nous ne serons donc plus capable d'observer le phénomène d'interférences.

Il existe deux cas particuliers importants, celui de deux impulsions identiques d'aire $\theta_1 = \theta_2 = \pi$ et celui de deux impulsions identiques d'aire $\theta_1 = \theta_2 = \pi/2$. Dans le premier cas, nous voyons que le terme (4.87) s'annule et que ni le déphasage ϕ , ni le temps de relaxation T_2 n'entrent en jeu dans l'expression de la population de l'état excité. Nous devinons ainsi comment au moyen d'impulsions d'aire $\theta = \pi$, nous pouvons déterminer le temps de vie T_1 . Bien sûr, il suffit pour annuler le terme (4.87) qu'une seule des deux impulsions ait une aire totale $\theta = \pi$, mais il est bien plus pratique de prendre deux impulsions de même aire. Le second cas de figure au contraire, maximise le terme (4.87) et permet donc de mieux observer le phénomène d'interférence, ce qui sera préférable pour accéder au temps de cohérence T_2 , une fois connu le temps de vie.

Pour finir, signalons qu'après son interaction avec la seconde impulsion, le système évolue librement et à l'instant $t > \delta^+$, son état est donné par :

$$\rho(t > \delta^+) = \begin{pmatrix} \sigma_{11}(\delta^+) e^{-t/T_1} & \sigma_{10}(\delta^+) e^{-i\omega_0 t} e^{-t/T_2} \\ \sigma_{01}(\delta^+) e^{i\omega_0 t} e^{-t/T_2} & 1 - \sigma_{11}(\delta^+) e^{-t/T_1} \end{pmatrix} \quad (4.89)$$

4.3.1.c Expression de la luminescence mesurée après l'interaction du système avec les deux impulsions successives

L'intensité $I(\theta_1, \theta_2, \delta, \phi)$ de la luminescence que nous mesurons est proportionnelle à l'intégrale temporelle de la population $\sigma_{11}(t)$ de l'état excité, c'est à dire à l'aire sous la

courbe rouge de la figure (4.7) :

$$\begin{aligned}
I(\theta_1, \theta_2, \delta, \phi) &\propto \int_0^\infty \sigma_{11}(t) dt \\
&\propto \int_{0^-}^{0^+} \sigma_{11}(t, \theta_1) dt + \sigma_{11}(0^+, \theta_1) \int_{0^+}^{\delta^-} e^{-t/T_1} dt \\
&\quad + \int_{\delta^-}^{\delta^+} \sigma_{11}(t, \theta_1, \theta_2, \phi) dt + \sigma_{11}(\delta^+, \theta_1, \theta_2, \phi) \int_{\delta^+}^\infty e^{-t/T_1} dt \quad (4.90)
\end{aligned}$$

En raison de la durée $\tau \ll \delta$ des impulsions, le premier et le troisième terme sont négligeables devant les deux autres. Nous obtenons ainsi l'expression :

$$I(\theta_1, \theta_2, \delta, \phi) \propto \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) T_1 \left(1 - e^{-\delta^-/T_1}\right) + \sigma_{11}(\delta^+, \theta_1, \theta_2, \phi) T_1 \quad (4.91)$$

où $\sigma_{11}(\delta^+, \theta_1, \theta_2, \phi)$ est donnée par (4.80), soit :

$$\begin{aligned}
I(\theta_1, \theta_2, \delta, \phi) &\propto \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) T_1 \left(1 - e^{-\delta^-/T_1}\right) \\
&\quad + \left\{ \frac{1}{2} + \left[\sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} - \frac{1}{2} \right] \cos \theta_2 \right. \\
&\quad \left. + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta^-/T_2} \cos \phi \right] \sin \theta_2 \right\} T_1 \\
&\propto \left\{ \frac{1}{2} (1 - \cos \theta_2) + \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \left[1 - (1 - \cos \theta_2) e^{-\delta^-/T_1} \right] \right. \\
&\quad \left. + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta^-/T_2} \cos \phi \right] \sin \theta_2 \right\} T_1 \\
&\propto \left\{ \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{\theta_1}{2}\right) \left[1 - 2 \sin^2\left(\frac{\theta_2}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} \right] \right. \\
&\quad \left. + \left[\frac{1}{2} \sin \theta_1 e^{-\delta^-/T_2} \cos \phi \right] \sin \theta_2 \right\} T_1 \quad (4.92)
\end{aligned}$$

Pour deux impulsions de même aire $\theta_1 = \theta_2 = \theta$, nous trouvons alors :

$$I(\theta, \delta, \phi) \propto \left\{ 2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \left[1 - \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) e^{-\delta^-/T_1} \right] + \frac{\sin^2 \theta}{2} \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right\} T_1 \quad (4.93)$$

Pour les deux cas particuliers évoqués précédemment, à savoir deux impulsions d'aire $\theta = \pi$ et deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$, nous avons respectivement :

$$I(\pi, \delta, \phi) \propto 2 T_1 \left\{ 1 - e^{-\delta^-/T_1} \right\} \quad (4.94)$$

et

$$I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi\right) \propto \frac{T_1}{2} \left\{ 2 - e^{-\delta^-/T_1} + \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right\} \quad (4.95)$$

4.3.2 Détermination du temps de cohérence

4.3.2.a Principe de la mesure

L'estimation du temps de cohérence T_2 par contrôle cohérent repose sur la mesure de l'amortissement du contraste des interférences observées, en fonction du temps écoulé entre les deux impulsions.

Afin de se placer dans les conditions optimales pour observer la diminution de l'amplitude des interférences, nous cherchons à maximiser dans l'expression de la luminescence $I(\theta_1, \theta_2, \delta, \phi)$ (4.92) le terme de cohérence, dans lequel est présent le paramètre ϕ :

$$\frac{1}{2} \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \quad (4.96)$$

Pour cela, nous avons recours à deux impulsions d'aire $\theta_1 = \theta_2 = \theta = \pi/2$, et l'expression de la luminescence détectée est alors donnée par l'expression (4.95). Pour traiter nos résultats et nous affranchir des variations d'intensité pouvant subvenir au cours d'une longue, très longue journée d'expérience, nous normalisons l'intensité détectée après les deux impulsions par l'intensité détectée après seulement une impulsion. Nous pouvons alors ajuster nos mesures au moyen de la formule :

$$I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi\right) = 2 - e^{-\delta^-/T_1} + \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \quad (4.97)$$

dans laquelle nous connaissons avec précision les paramètres δ et ϕ , grâce l'interféromètre de Michelson stabilisé en phase. Notons que l'expression (4.97) dépendant à la fois de T_2 et de T_1 , il est donc nécessaire pour être capable de déterminer le temps de cohérence d'avoir préalablement évalué le temps de vie du système.

La figure (4.8) simule, au moyen des équations de Bloch optiques, l'évolution de la population de l'état $|1\rangle$ lorsqu'une boîte, dont l'exciton neutre est caractérisé par $T_1 = T_2 = 600 \text{ ps}$ (valeurs choisies en référence à la boîte dont les résultats seront présentés par la suite), est excitée successivement par deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$, séparées par un délai $\delta = 20 \text{ ps}$, $\delta = 200 \text{ ps}$, $\delta = 400 \text{ ps}$, $\delta = 1000 \text{ ps}$. En rouge, nous avons représenté le cas de deux impulsions en phase et en bleu de deux impulsions en opposition de phase. La première impulsion $\pi/2$ met le système dans l'état $(|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$. À court délai, lorsque la seconde impulsion est en phase avec la première, les interférences constructives mettent le système dans l'état $|1\rangle$, tandis que lorsque les deux impulsions sont en opposition de phase, les interférences destructives mettent le système dans l'état $|0\rangle$. À mesure que le délai entre les impulsions augmente, l'exciton a perdu la mémoire de la phase de la première impulsion qui l'a créé, et le contraste des interférences diminue jusqu'à ce que à long délai, la seconde impulsion ait le même effet qu'elle soit en phase ou en opposition de phase avec la première.

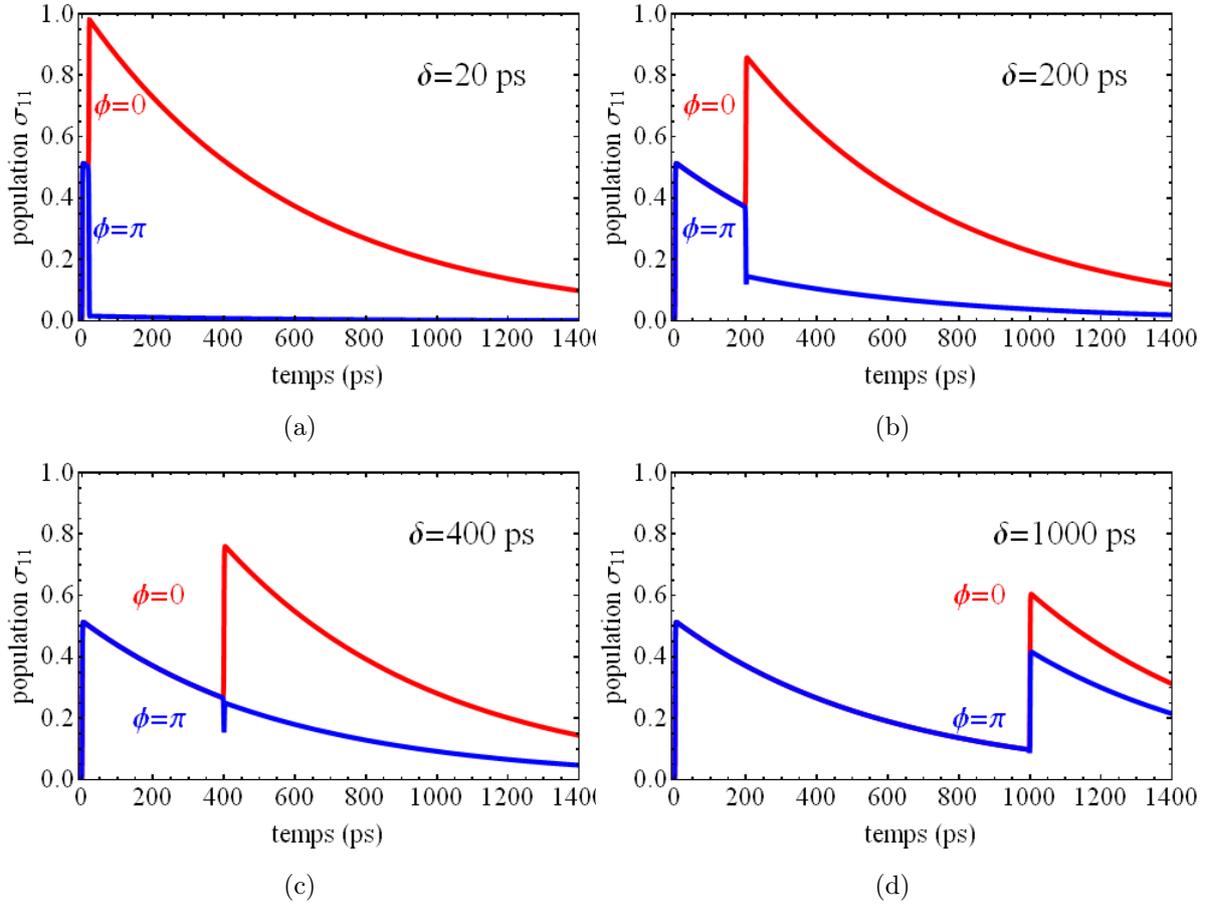


FIGURE 4.8 : Évolution de la population d'un système à deux niveaux de temps de vie $T_1 = 600$ ps et de temps de cohérence $T_2 = 600$ ps, soumis à deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$, en phase (courbe rouge) et en opposition de phase (courbe bleue), et séparées d'un délai (a) $\delta = 20$ ps, (b) $\delta = 200$ ps, (c) $\delta = 400$ ps, et (d) $\delta = 1000$ ps.

Notons que si l'expression de la luminescence dépend de T_1 , ce n'est pas le cas de celle de la population de l'état excité, donnée par (4.80), qui dans le cas de deux impulsions d'aire $\theta_1 = \theta_2 = \theta = \pi/2$ devient :

$$\sigma_{11}(\delta^+, \frac{\pi}{2}, \phi) = \frac{1}{2} \left(1 + \cos \phi e^{-\delta^-/T_2} \right) \quad (4.98)$$

Cette expression, qui pour un délai δ donné, ne dépend que des paramètres ϕ et T_2 , montre que dans ce cas particulier, la variation de population n'est causée que par l'amplitude des interférences, valant $e^{-\delta^-/T_2}/2$.

4.3.2.b Résultats expérimentaux

Les expériences de contrôle cohérent sont réalisées en excitant une boîte quantique au moyen de deux impulsions successives, résonnantes avec la transition excitonique fon-

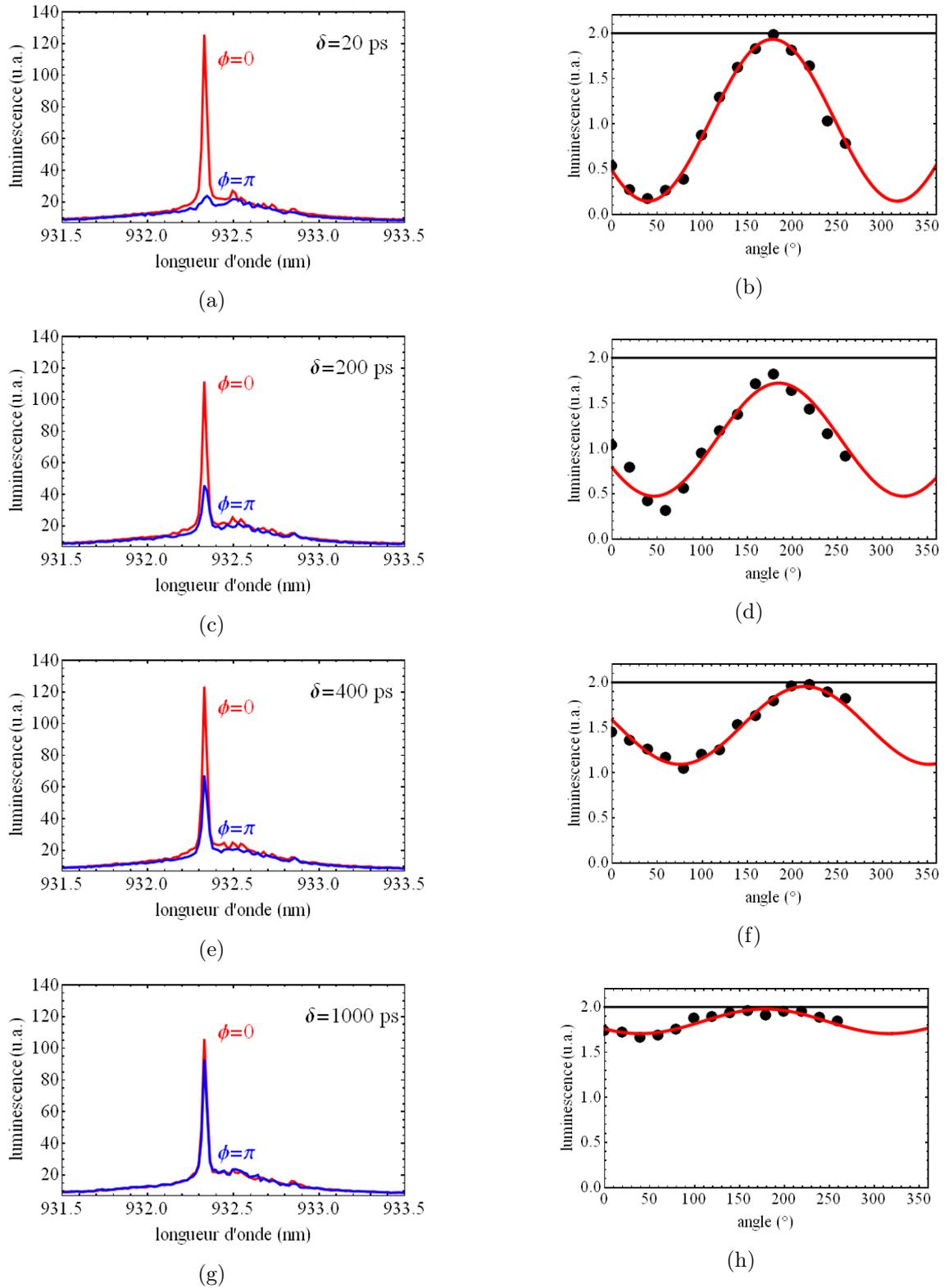


FIGURE 4.9 : Évaluation du contraste des interférences pour différents délais δ entre les deux impulsions. Sur les figures de droite est représentée l'évolution de l'intensité de la luminescence en fonction du déphasage ϕ entre les deux impulsions, pour des délais $\delta = 20$ ps, $\delta = 200$ ps, $\delta = 400$ ps et $\delta = 1000$ ps, et sur les figures de gauche sont représentés les spectres de luminescence correspondants, pour $\phi = 0$ en rouge et $\phi = \pi$ en bleu.

damentale et de même aire θ . Ces impulsions sont générées en intercalant sur le chemin d'excitation un interféromètre de Michelson stabilisé en phase, permettant de contrôler précisément à la fois le délai δ entre les deux impulsions, et leur déphasage relatif ϕ . Afin de déterminer le temps de cohérence T_2 , c'est à dire la durée d'amortissement du contraste des interférences entre l'oscillation du moment dipolaire moyen du système et la seconde impulsion, nous augmentons progressivement le délai δ entre les impulsions. Pour chaque délai nous faisons varier le déphasage relatif ϕ et enregistrons un spectre. Ainsi, sur les spectres à gauche de la figure (4.9) nous avons choisi de montrer, pour différents délais δ , l'intensité du pic de luminescence d'une boîte, en rouge pour deux impulsions successives en phase et en bleu pour deux impulsions successives en opposition de phase. Rappelons que l'intensité de ces pics correspond à l'aire sous les courbes rouges et bleues de la figure (4.8). Sur les sinusoïdes représentées à droite de la figure (4.9) a été reportée la mesure de l'intensité de luminescence, normalisée par la luminescence de la boîte quantique excitée par une seule impulsion, pour chaque déphasage, à différents délais. Nous voyons ainsi diminuer l'amplitude des oscillations, c'est à dire le contraste des interférences, à mesure que le délai entre les deux impulsions augmente, ce qui témoigne de la perte progressive de cohérence du système.

En théorie, les mesures réalisées pour deux impulsions en phase et en opposition de phase suffisent à elles seules à rendre compte de la perte de cohérence. Cependant l'interféromètre de Michelson permettant uniquement de faire varier le déphasage ϕ avec une grande précision, et non de connaître la valeur de celui-ci, nous sommes en réalité contraints pour chaque délai à réaliser une sinusoïde presque complète pour déterminer la valeur de la luminescence pour les deux cas extrêmes. En outre, avoir plusieurs points permet d'ajuster numériquement l'oscillation obtenue et de déterminer avec une meilleure précision l'intensité maximale, correspondant à deux impulsions en phase, et l'intensité minimale, correspondant à deux impulsions en opposition de phase. Nous pouvons également nous assurer ainsi du bon déroulement de nos mesures, lorsque la courbe obtenue est bien sinusoïdale.

Sur la figure (4.10), est tracée l'évolution de l'intensité de la luminescence émise par la boîte étudiée sur la figure (4.9), excitée par deux impulsions en phase (courbe rouge) et par deux impulsions en opposition de phase (courbe bleu), normalisée par la luminescence de la boîte excitée par une impulsion seule. Les points expérimentaux sont ajustés au moyen de l'expression de la luminescence (4.97). Nous observons bien, à mesure que le délai entre les impulsions augmente, une diminution de l'écart entre l'intensité maximale $I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = 0)$ et l'intensité minimale $I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \pi)$, qui tendent vers la même valeur pour de grands délais. Contrairement à l'intuition que l'on pourrait avoir, l'évolution des deux intensités n'est pas symétrique par rapport à la valeur limite qui d'ailleurs n'est pas 1, mais 2. En effet, comme

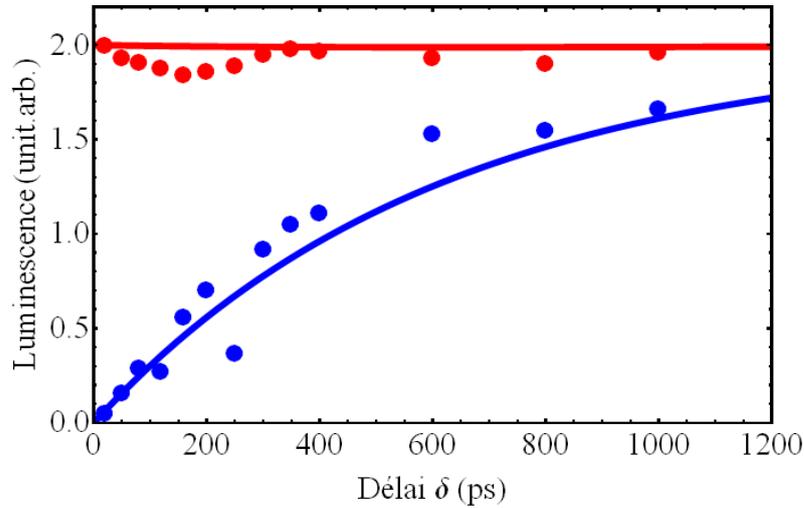


FIGURE 4.10 : Évolution de la luminescence en fonction du délai entre les deux impulsions, pour deux impulsions en phase (rouge) et deux impulsions en opposition de phase (bleu). Les deux courbes sont ajustées au moyen de l'expression de la luminescence (4.97) pour $T_1 = 620$ ps, $T_2 = 600$ ps.

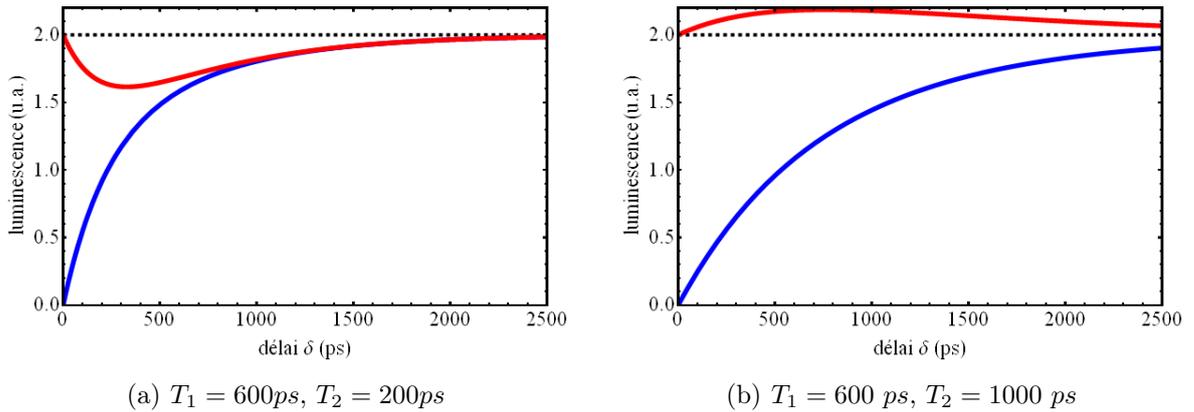


FIGURE 4.11 : Simulation de l'évolution de la luminescence en fonction du délai entre les deux impulsions, pour deux impulsions en phase (rouge) et deux impulsions en opposition de phase (bleu), pour $T_1 = 600$ ps et (a) $T_2 = 200$ ps et (b) $T_2 = 1000$ ps.

nous l'avons déjà expliqué, la luminescence correspond à l'intégrale dans le temps de la population de l'état excité, soit l'aire sous les courbes rouges et bleues de la figure (4.8). Nous voyons bien que l'aire sous la courbe rouge varie peu quel que soit le délai, tandis que celle sous la courbe bleue augmente continuellement, quant à la valeur limite, il paraît évident qu'à long délai, la luminescence après que la boîte ait été excitée successivement par les deux impulsions vaut deux fois la luminescence de la boîte excitée par une impulsion seule. La figure (4.11) montre quant à elle la simulation de cette évolution pour différents rapports T_2/T_1 . Nous y remarquons que si le comportement de $I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \pi)$ est toujours

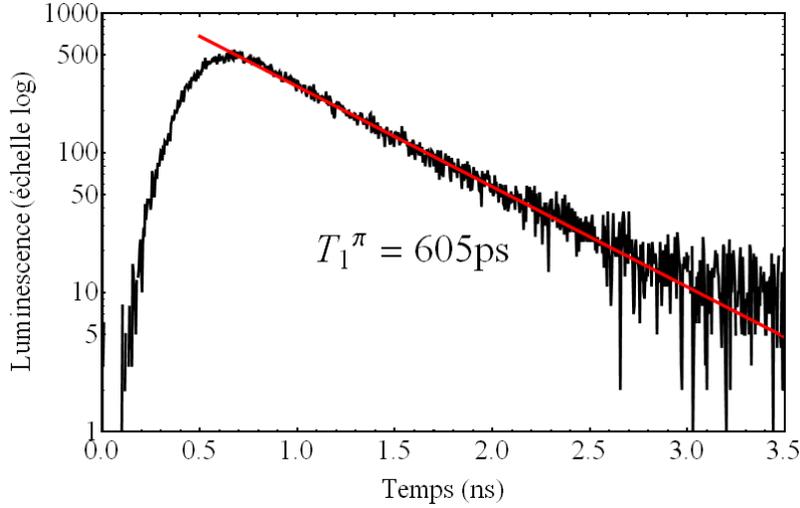


FIGURE 4.12 : Décroissance temporelle de la luminescence pour une impulsion d'aire $\theta = \pi$.

le même, celui de $I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = 0)$ varie entre (4.11.a) où $T_2/T_1 \approx 0.3$, (4.10) où $T_2/T_1 \approx 1$ et (4.11.b) où $T_2/T_1 \approx 1.7$.

Contraste des interférences

Au lieu de représenter les mesures directes d'intensité, comme c'est le cas sur la figure (4.10), il est possible de tracer l'évolution du contraste des interférences observées :

$$C(\delta) = \frac{I_{Max} - I_{min}}{I_{Max} + I_{min}} = \frac{I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = 0) - I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \pi)}{I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = 0) + I(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \pi)} \quad (4.99)$$

en fonction du délai entre les deux impulsions. En utilisant l'expression de l'intensité (4.97), nous obtenons :

$$C(\delta) = \frac{e^{-\delta/T_2}}{2 - e^{-\delta/T_1}} \quad (4.100)$$

L'intérêt de présenter nos résultats sous cette forme est de diminuer le bruit des mesures directes d'intensité, étant donné que l'incertitude sur chaque mesure est la même, pour un délai donné, que l'intensité soit maximale ou minimale.

D'après l'expression du contraste (4.100), il apparaît que pour accéder au temps de cohérence du système, il faut avoir préalablement déterminé son temps de vie. Cela peut avoir été réalisé au moyen de mesures directes, comme effectué dans la courbe (4.12), ou par des expériences de contrôle cohérent comme nous l'expliquerons par la suite dans la section 4.3.3.

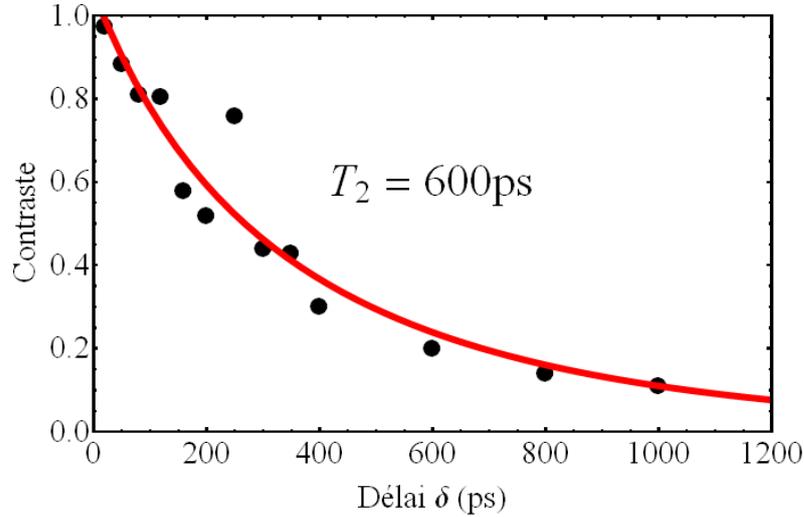


FIGURE 4.13 : Évolution du contraste des interférences en fonction du délai entre les deux impulsions. En ajustant la courbe expérimentale au moyen de l'expression (4.100) avec $T_1 = 620$ ps, nous trouvons $T_2 = 600$ ps.

La figure (4.13) montre l'évolution du contraste en fonction du délai entre les deux impulsions, pour la boîte dont nous avons déjà représenté la luminescence sur les figures (4.9) et (4.10), et dont le temps de vie à la résonance est d'environ $T_1 \approx 600$ ps, comme le montre les courbes (4.12). L'ajustement de la courbe expérimentale au moyen de l'expression (4.100) permet de déterminer le temps de cohérence $T_2 = 600$ ps. Notons que ce résultat est une exception, la majorité des temps de cohérence trouvés dans ces boîtes d'InAs étant aux alentours de 300 ps.

4.3.3 Détermination du temps de vie

4.3.3.a Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi$

Ainsi que nous l'avons déjà mentionné, il est possible dans l'expression de la luminescence (4.92) d'annuler le terme de cohérence :

$$\frac{1}{2} \sin \theta_1 \sin \theta_2 \cos \phi e^{-\delta/T_2} \quad (4.101)$$

au moyen d'au moins une impulsion d'aire $\theta = \pi$. Pour des raisons de simplicité, nous choisissons cependant deux impulsions de même aire $\theta = \pi$. L'expression de la luminescence détectée est alors donnée par l'expression (4.94) et en normalisant l'intensité détectée après les deux impulsions par l'intensité détectée après seulement une impulsion, il est possible d'ajuster les mesures expérimentales au moyen de la formule :

$$I(\pi, \delta, \phi) = 2 \left(1 - e^{-\delta/T_1} \right) \quad (4.102)$$

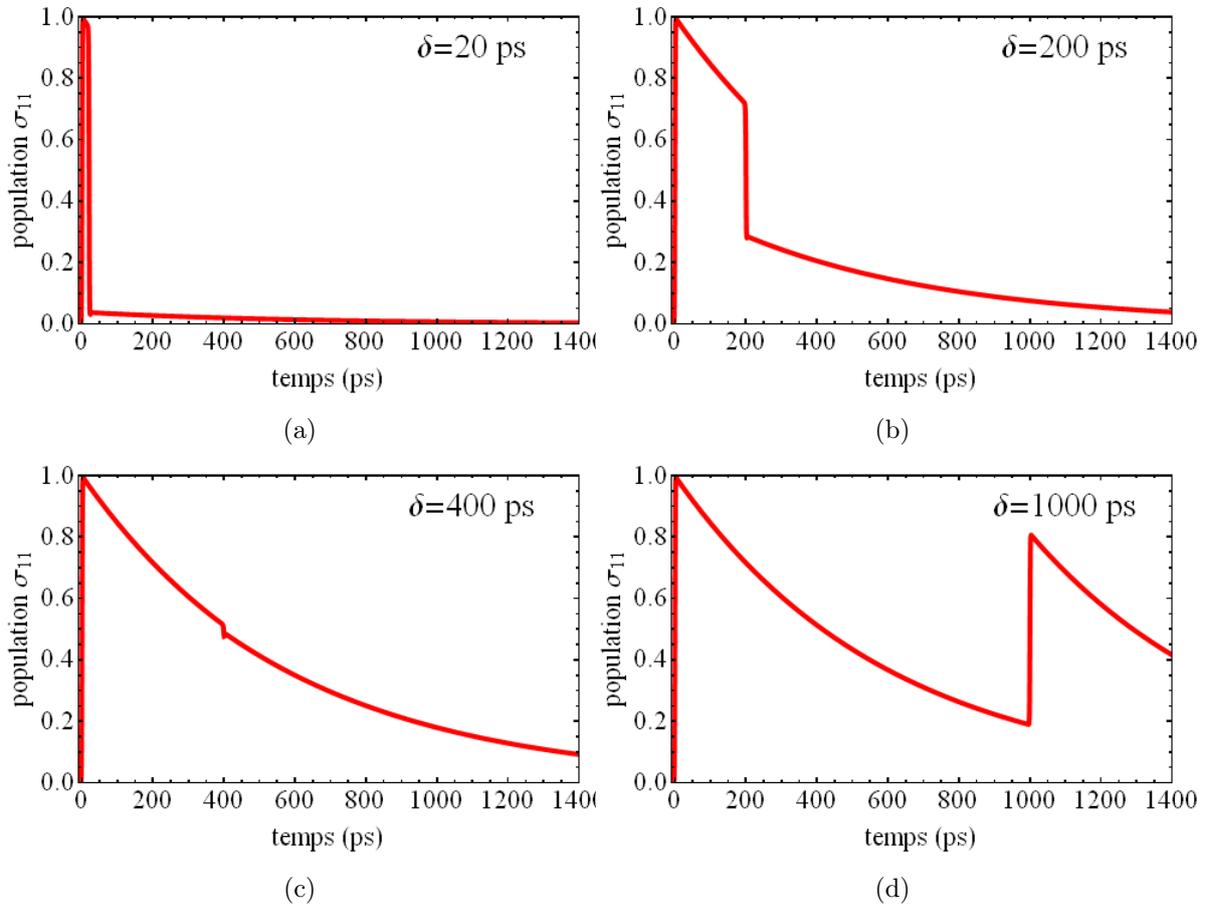


FIGURE 4.14 : Évolution de la population d'un système à deux niveaux de temps de vie $T_1 = 600 ps$, soumis à deux impulsions d'aire $\theta = \pi$ et séparées d'un délai $\delta = 20 ps$, (b) $\delta = 200 ps$, (c) $\delta = 400 ps$, et (d) $\delta = 1000 ps$.

La luminescence à l'issue de la seconde impulsion ne dépend donc plus que du délai δ , que nous faisons varier au moyen de l'interféromètre de Michelson, et du temps de vie T_1 qui peut ainsi être déterminé.

Sur la figure (4.14) est représentée l'évolution de la population de l'état excité d'un système caractérisé par un temps de vie $T_1 = 600 ps$, pour deux impulsions résonnantes d'aire $\theta = \pi$, séparées de différents délais. Dans les deux premières courbes, correspondant à des délais $\delta = 20 ps$ et $\delta = 200 ps$, nous voyons que le processus d'émission stimulée, qui a pour effet de désexciter le système, l'emporte sur le processus d'absorption, dépeuplant ainsi l'état $|1\rangle$. À mesure que le délai entre les impulsions augmente et s'approche de la valeur du temps de vie, les phénomènes d'émission stimulée et d'absorption se compensent, comme nous l'observons sur la courbe à $\delta = 400 ps$. Puis, quand le délai δ devient supérieur au temps de vie, le système a relaxé avant d'interagir avec la seconde impulsion qui va alors

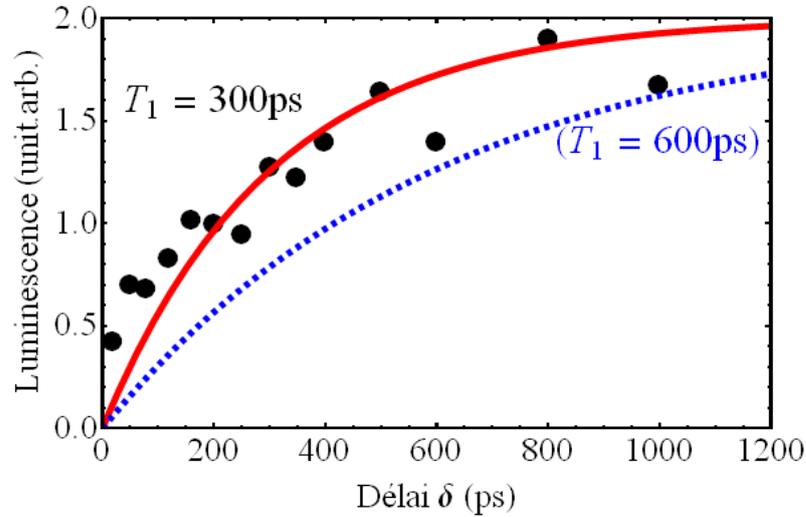


FIGURE 4.15 : Évolution de la luminescence en fonction du délai δ entre les deux impulsions d'aire $\theta = \pi$. En noir sont représentés les points expérimentaux et en rouge leur ajustement au moyen de (4.102) qui permet de déterminer $T_1 = 300$ ps. En bleu est simulée l'évolution de l'intensité en fonction de δ pour $T_1 = 600$ ps.

repeupler l'état excité par absorption d'un photon. Nous voyons donc comment il nous est a priori possible d'évaluer le temps de vie en faisant varier le délai δ entre les impulsions et en mesurant l'intensité normalisée de la luminescence, pour chaque délai. Un résultat typique est présenté sur la figure (4.15).

Nous avons ainsi reporté l'intensité de la luminescence mesurée pour plusieurs délais δ entre les deux impulsions pour la boîte dont nous avons déjà présenté l'étude de la cohérence dans la figure (4.13). L'ajustement des points expérimentaux au moyen de l'expression (4.102) permet ainsi de déterminer un temps de vie $T_1 = 300$ ps. Cependant, la mesure directe pour une impulsion d'aire $\theta = \pi$ de la décroissance temporelle de la luminescence, représentée figure (4.12), est le double de cette valeur, $T_1^\pi = 605$ ps. En outre, nous remarquons que pour les points expérimentaux de la figure (4.15), la luminescence mesurée pour de courts délais est assez importante (0.43 pour $\delta = 20$ ps), alors que théoriquement elle doit être faible, et que pour de longs délais, elle tend vers 2 en oscillant, au lieu de le faire exponentiellement. D'une manière générale, dans les mesures que nous avons réalisées au moyen d'impulsions d'aire $\theta = \pi$, nous avons toujours perçu des variations de luminescence assez incongrues, et obtenu par cette méthode des temps de vie étrangement courts.

Pour comprendre ce phénomène, nous avons vérifié qu'en excitant les boîtes avec des

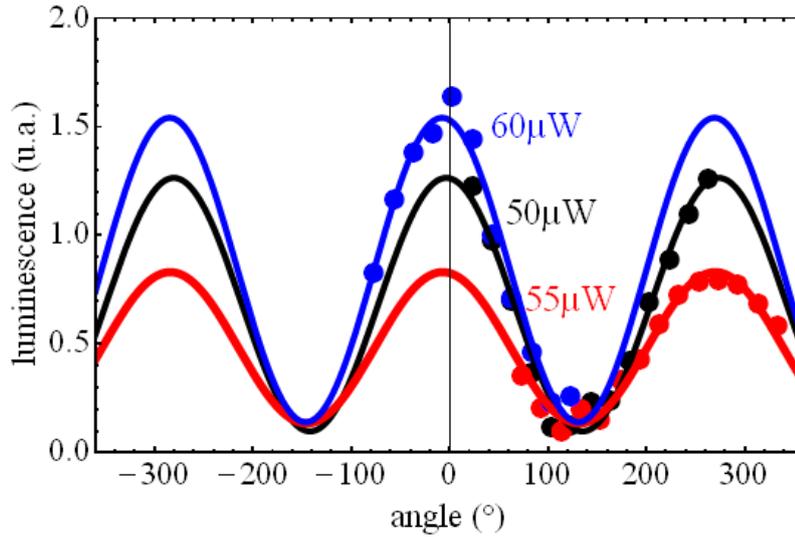


FIGURE 4.16 : Évolution de la luminescence en fonction du déphasage ϕ , pour un délai $\delta = 20$ ps, pour une puissance d'excitation de $\mathcal{P} = 55$ μW (rouge), $\mathcal{P} = 50$ μW (noir), $\mathcal{P} = 60$ μW (bleu).

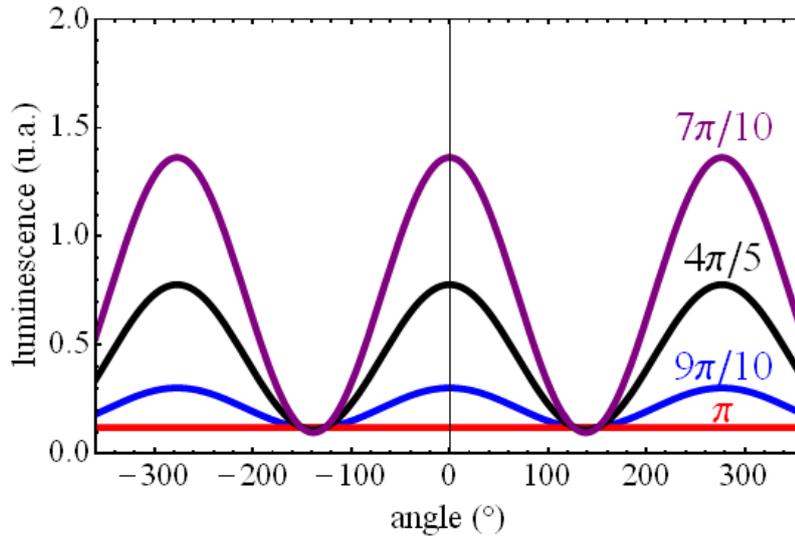


FIGURE 4.17 : Simulation des variations de luminescence en fonction du déphasage ϕ , au délai $\delta = 20$ ps, pour un système caractérisé par $T_1 = T_2 = 600$ ps excité par deux impulsions π (en rouge), $9\pi/10$ (en bleu), $4\pi/5$ (en noir), $7\pi/10$ (en violet).

impulsions d'aire $\theta = \pi$, leur luminescence était bien indépendante du déphasage ϕ entre les impulsions. Nous avons alors, pour une boîte donnée, repéré sur la courbe d'oscillations de Rabi la puissance correspondant à une impulsion d'aire $\theta = \pi$ et pour un délai donné de $\delta = 20$ ps (délai en deçà duquel il existe un risque de recouvrement des impulsions),

nous avons fait varier, comme cela est illustré sur la figure (4.16), le déphasage ϕ entre les impulsions. À notre grande surprise, non seulement la luminescence oscillait en fonction du déphasage, mais le contraste de ces oscillations, loin d'être négligeable, approchait 50%. Estimant à $\pm 5\%$ notre erreur sur la détermination de la puissance correspondant à $\theta = \pi$, nous avons fait varier la puissance de $\pm 10\%$ autour de cette valeur afin de déterminer l'évolution du contraste de l'oscillation de la luminescence en fonction de ϕ . Comme le montre la figure (4.16), quelle que soit la puissance d'excitation, ce contraste ne s'annule jamais et devient plus important à mesure que la puissance s'éloigne de celle déterminée au moyen de la courbe d'oscillation de Rabi.

La figure (4.17) simule la dépendance en ϕ de la luminescence d'un système caractérisé par $T_1 = T_2 = 600$ ps excité par deux impulsions de même aire θ . En rouge est représentée la courbe correspondant à $\theta = \pi$, qui ne dépend pas du déphasage entre les deux impulsions. En bleu est représentée l'évolution de la luminescence pour $\theta = \pi \pm 10\%$, en noir pour $\theta = \pi \pm 20\%$ et en violet pour $\theta = \pi \pm 30\%$. Le contraste des oscillations ainsi obtenues indique que la courbe rouge de (4.16) correspondrait à une erreur de 25% sur la détermination de la puissance correspondant à $\theta = \pi$. Notre incertitude étant bien inférieure, il semblerait qu'un phénomène supplémentaire soit ici à l'œuvre.

En faisant des expériences de contrôle cohérent avec des impulsions $\theta = \pi$, sans nous préoccuper du déphasage entre les impulsions, nous sélectionnions en fait sans le savoir un point aléatoire de l'oscillation en fonction de la phase ϕ correspondant à chaque délai et nous pouvions, pour un délai prendre une mesure correspondant à $\phi = 0$, pour le délai suivant une mesure correspondant à $\phi = 3\pi/4$ et ainsi de suite, obtenant alors des valeurs expérimentales au comportement déconcertant.

4.3.3.b Mesure du temps de vie avec deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$

Du fait de l'incertitude des mesures de temps de vie avec des impulsions d'aire $\theta = \pi$, les mesures expérimentales obtenues pour deux impulsions $\theta = \pi/2$ seront utilisées, aussi bien pour déterminer le temps de cohérence du système que le temps de vie de l'exciton. L'expression normalisée de l'intensité de la luminescence d'une boîte excitée par les deux impulsions $\theta = \pi/2$ successives est :

$$I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi\right) = 2 - e^{-\delta/T_1} + \cos \phi e^{-\delta/T_2} \quad (4.103)$$

Nous voyons donc comment, pour nous affranchir du terme de cohérence et obtenir une expression dépendant uniquement du temps de vie T_1 , nous pouvons utiliser un couple d'impulsions $\theta = \pi/2$, en sélectionnant pour chaque délai δ la luminescence obtenue pour un déphasage $\phi = \pi/2$ entre les deux impulsions. En effet, la luminescence normalisée

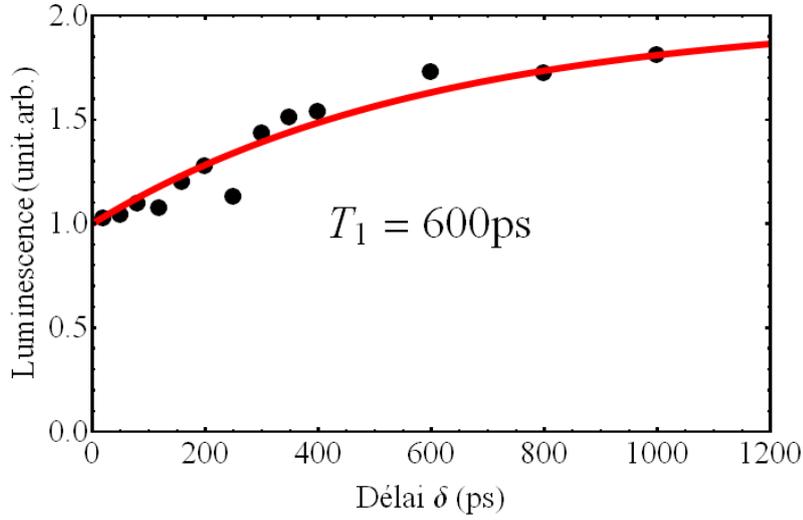


FIGURE 4.18 : Évolution de la luminescence $I(\theta = \frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \frac{\pi}{2})$ en fonction du délai δ , pour deux impulsions d'aire $\theta = \pi/2$, déphasées l'une par rapport à l'autre de $\phi = \pi/2$. Les points expérimentaux sont ajustés numériquement en rouge au moyen de l'expression (4.104).

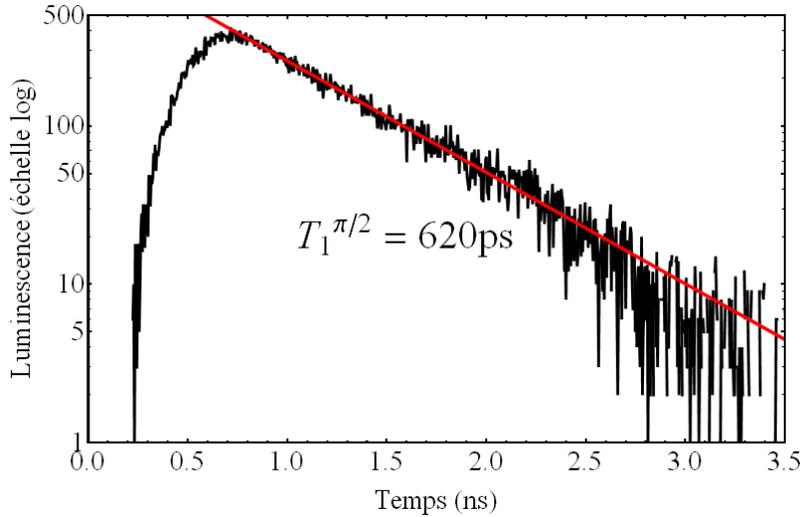


FIGURE 4.19 : Décroissance temporelle de la luminescence pour une impulsion d'aire $\theta = \pi/2$.

s'écrit alors simplement :

$$I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \frac{\pi}{2}\right) = 2 - e^{-\delta/T_1} \quad (4.104)$$

Il nous suffit alors d'estimer pour chaque délai δ la valeur de :

$$I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \frac{\pi}{2}\right) = \frac{I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = 0\right) + I\left(\frac{\pi}{2}, \delta, \phi = \pi\right)}{2} \quad (4.105)$$

et d'ajuster les points expérimentaux au moyen de l'expression (4.104), comme cela a été fait figure (4.18). Pour la boîte que nous considérons ici, nous avons ainsi déterminé sous excitation résonante d'aire $\theta = \pi/2$, un temps de vie de $T_1 = 600$ ps. Ce temps de vie peut être comparé au temps $T_1 = 620$ ps trouvé de manière directe au moyen de la photodiode à avalanche pour une impulsion d'aire $\theta = \pi/2$, représenté sur la figure (4.19). D'une manière générale, les résultats trouvés par contrôle cohérent au moyen d'impulsion $\pi/2$ sont en assez bon accord avec ceux déterminés en observant la décroissance temporelle de la luminescence.

4.4 Processus de décohérence

Le taux de relaxation Γ de l'énergie peut provenir des processus d'absorption et d'émission de photons où de l'interaction de la boîte quantique avec son environnement (phonons du réseau par exemple). Il peut de ce fait se séparer en deux contributions, un taux de relaxation radiatif Γ_{sp} que nous avons déjà évoqué dans la section 4.1.2 et qui provient de l'émission spontanée, et un taux de relaxation non radiatif Γ_{nr} provenant essentiellement de l'émission et de l'absorption de phonons, ayant pour effet de changer l'énergie du système [158]. Le temps de vie $T_1 = 1/\Gamma$ de l'exciton neutre dans la boîte quantique obéit donc à l'équation :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^{sp}} + \frac{1}{T_1^{nr}} \quad (4.106)$$

Dans les boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs, aux températures que nous considérons, comme nous l'avons vu dans la section 3.6.5, l'interaction du système avec les phonons peut être traité de manière perturbative et le couplage électron-phonon n'a alors d'effet que sur les cohérences et non sur les populations [159]. Il est de ce fait raisonnable de ne prendre en compte que les processus radiatifs et d'écrire :

$$\frac{1}{T_1} \approx \frac{1}{T_1^{sp}} \quad (4.107)$$

L'absence de l'influence des phonons sur la mesure du temps de vie étant démontrée par la figure (4.20), où est représentée la décroissance temporelle de la luminescence pour une boîte quantique en faisant varier la température entre 7 K et 22 K. D'une manière générale, nous ne trouvons aucune variation du temps de vie sur la gamme de température, s'étendant de 7 K à 35 K, considérée dans cette thèse, ce qui a déjà été observé jusqu'à une température de 50 K [151, 160].

Par ailleurs, nous savons que lorsque seule l'émission spontanée entre en jeu dans la relaxation de l'énergie, le temps T_2 de relaxation des cohérences est tel que :

$$T_2 = 2 T_1 \quad (4.108)$$

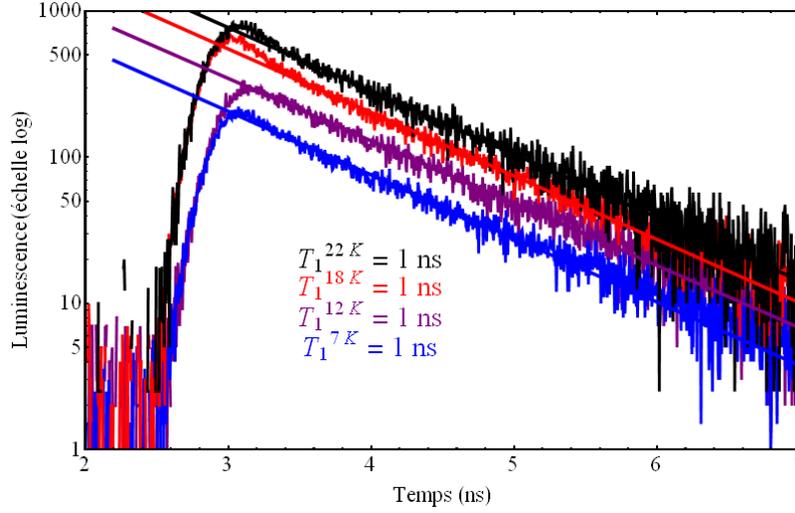


FIGURE 4.20 : *Décroissance temporelle de la luminescence pour une impulsion d'aire $\theta = \pi/2$ pour quatre températures différentes, 7K (bleu), 12K (violet), 18K (rouge) et 22K (noir).*

Comme le montrent les résultats expérimentaux présentés tout au long de ce chapitre, c'est en réalité loin d'être le cas. Il nous faut donc prendre en compte des processus de déphasage pur, jouant sur la phase des oscillations du moment dipolaire moyen, sans changer l'énergie du système. Le taux de déphasage total se met alors sous la forme :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2 T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (4.109)$$

où $1/T_1$ est le taux de relaxation en énergie et $1/T_2^*$ le taux de déphasage pur [76, 161, 162, 163].

Ces processus de déphasage pur sont des processus élastiques pouvant provenir d'interaction "virtuelles" du système avec les phonons du réseau, qui changent la phase de celui-ci, sans en modifier l'énergie [128, 139, 164, 165, 166, 167], de la formation de polarons [168, 169, 170, 171, 172] ou bien de la diffusion spectrale causée par les fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes [111, 142, 151, 173, 174, 175, 176].

Dans les boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs que nous avons étudiées, nous trouvons typiquement des temps de vie sous excitation résonante de l'ordre de 650 ps, associés à des temps de cohérence pouvant varier de 200 ps à 600 ps en fonction des boîtes. En moyenne, nous trouvons :

$$\begin{cases} T_1 = 650 \text{ ps} \\ T_2 = 300 \text{ ps} \\ T_2^* = 400 \text{ ps} \end{cases} \quad (4.110)$$

De même, sous excitation non résonnante, nous avons en moyenne :

$$\left\{ \begin{array}{l} T_1 = 1000 \text{ ps} \\ T_2 = 400 \text{ ps} \\ T_2^* = 500 \text{ ps} \end{array} \right. \quad (4.111)$$

Ainsi, nous trouvons un taux de déphasage pur $1/T_2^*$ semblable dans les deux cas de figure (2.5 ns^{-1} à la résonance et 2 ns^{-1} hors résonance). Il semblerait donc que la perte de cohérence par ce type de processus soit du même ordre de grandeur dans les deux cas, même si nous ne pouvons tirer de conclusion définitive sur ce point, les mêmes boîtes n'ayant jamais été étudiées sous excitation résonnante et non résonnante.

Les processus de déphasage pur jouant un rôle majeur dans la perte de cohérence, il apparaît donc essentiel, de les réduire afin de pouvoir utiliser les boîtes quantiques dans le cadre de dispositifs d'information quantique. Pour tenter de les appréhender plus finement, nous allons chercher à déterminer le rôle des phonons dans les processus de décohérence prenant place dans nos systèmes sous excitation résonnante. Pour cela, analysons l'évolution du temps de cohérence en fonction de la température.

Évolution du temps de cohérence en fonction de la température

Dans la section 3.6.5, nous avons présenté le couplage du système excitonique aux phonons du réseaux, en utilisant une approche perturbative car dans les boîtes auto-organisées d'InAs comme celle que nous étudions, des température supérieures à $40 - 50 \text{ K}$ sont nécessaires pour entrer en régime de couplage fort et considérer que les électrons et les phonons forment alors des polarons [128]. Nous avons ainsi démontré que cette interaction introduisait dans les équations de Bloch optiques un terme de perte de cohérence dépendant de la température aussi bien que de la puissance d'excitation.

Ce terme de relaxation induit par les phonons parvient assez bien à expliquer l'amortissement des oscillations de Rabi que nous observons, de même que la diminution de cohérence à mesure que la température augmente. En effet, comme cela est illustré par les figures (4.21.a) et (4.21.c), obtenues pour deux boîtes différentes de celle étudiée précédemment, l'évolution du taux de décohérence $1/T_2$ est linéaire en fonction de la température. Cependant en prolongeant cette droite pour obtenir la valeur à température nulle, nous ne retrouvons pas toujours la limite radiative de $1/2T_1$.

Ainsi, sur la figure (4.21.a) est représentée l'augmentation du taux de décohérence en fonction de la température, sous excitation résonnante réalisée par des impulsions d'aire $\pi/2$, pour une boîte où nous avons mesuré un temps de vie résonant $T_1 = 650 \text{ ps}$, ne variant

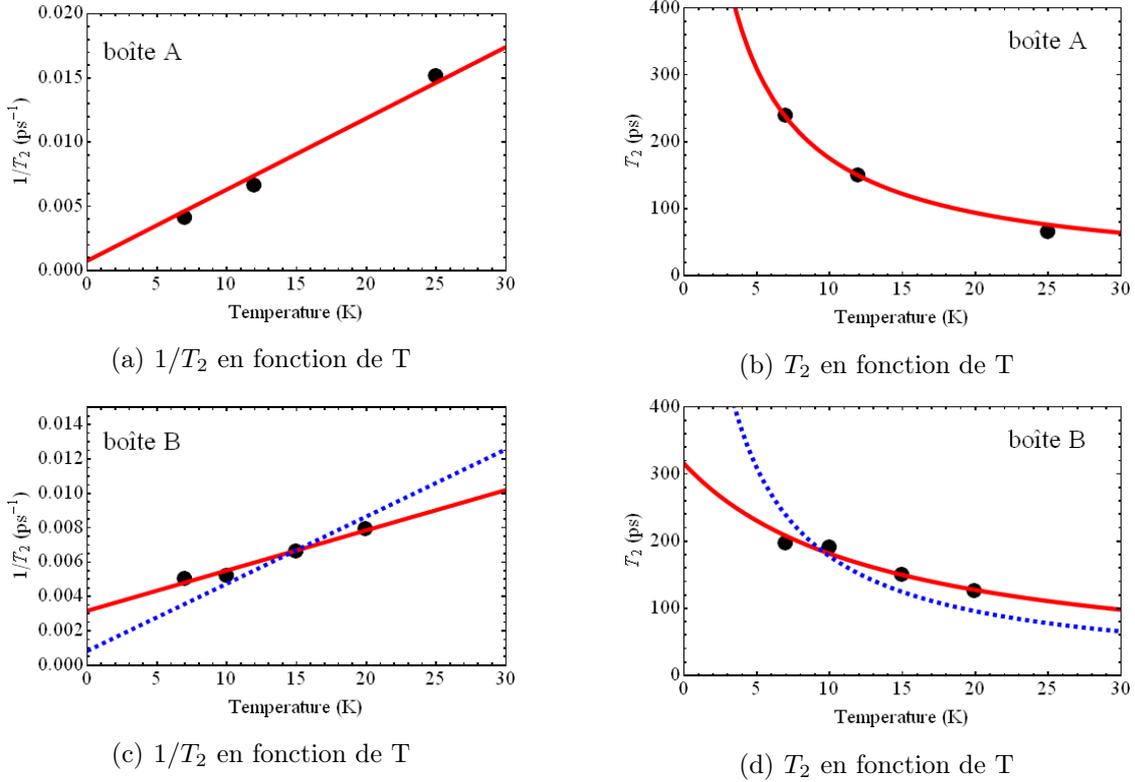


FIGURE 4.21 : Perte de cohérence dans deux boîtes quantiques en fonction de la température. (a) Évolution du taux de cohérence $1/T_2$ en fonction de la température pour une boîte donnée et (b) évolution du temps de cohérence correspondant, les points expérimentaux étant ajustés en rouge au moyen de l'expression (4.112). (c) Évolution du taux de cohérence $1/T_2$ en fonction de la température pour une autre boîte quantique et (d) évolution du temps de cohérence correspondant, les points expérimentaux étant ajustés en bleu au moyen de l'expression (4.112) et en rouge au moyen de l'expression (4.113).

pas avec la température sur la gamme explorée (entre 7 K et 30 K). En rouge est tracé l'ajustement des points expérimentaux par l'expression de la décohérence induite par les phonons :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2 T_1} + \mathcal{K} \Omega_R^2 T \quad (4.112)$$

où T est la température et où nous prenons les paramètres $T_1 = 650 \text{ ps}$ et $\mathcal{K} = 10 \text{ fs.K}^{-1}$ déterminés au chapitre précédent, en laissant Ω_R comme paramètre d'ajustement. L'accord avec les points expérimentaux est assez bon et si nous traçons figure (4.21.b) l'évolution du temps de cohérence sous excitation résonnante en fonction de la température de l'échantillon, nous retrouvons bien à température nulle $T_2 = 2 T_1 = 1300 \text{ ps}$. Ces deux courbes ont nécessité d'être ajustées en fixant la condition $T_2 \leq 2T_1$.

Les figures (4.21.c) et (4.21.d) représentent quant à elles l'évolution du taux et du temps de cohérence en fonction de la température pour une boîte dont le temps de vie mesuré à la résonance est de $T_1 = 600 \text{ ps}$, quelle que soit la température de l'échantillon. Sur ces deux figures, en bleu est tracé l'ajustement des points expérimentaux au moyen de l'expression précédente (4.112), en prenant $T_1 = 600 \text{ ps}$ et $\mathcal{K} = 10 \text{ fs.K}^{-1}$. L'allure des courbes ainsi obtenues étant peu satisfaisante, nous choisissons d'ajouter phénoménologiquement un second terme de décohérence T_2^{**} , indépendant de la température :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2 T_1} + \frac{1}{T_2^{**}} + \mathcal{K} \Omega_R^2 T \quad (4.113)$$

où $T_2^{**} = 430 \text{ ps}$, afin d'obtenir l'ajustement des points expérimentaux tracé en rouge. En prenant en compte ce déphasage supplémentaire $T_2^{**} = 430 \text{ ps}$, à température nulle le temps de cohérence tend alors vers 320 ps au lieu de $2T_1 = 1200 \text{ ps}$, comme c'est le cas de la courbe bleue.

Nous venons donc de mettre en évidence la présence d'au moins trois processus de perte de cohérence. Le premier est radiatif et dû à l'émission spontanée, le second est causé par l'interaction du système avec les phonons du réseau environnant et est proportionnel à la température, et un troisième terme, indépendant de la température et semble-t-il de la puissance d'excitation (puisque l'amortissement des oscillations de Rabi de la boîte présenté dans (4.21.c) et (4.21.d) peut s'expliquer uniquement par l'ajout du terme $\mathcal{K} \Omega_R^2 T$ dans les équations de Bloch optiques). L'origine de ce terme est pour l'instant mal connue, même si nous soupçonnons l'influence des fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes. De manière générale, sous excitation résonnante nous trouvons en moyenne :

$$\begin{cases} T_1 = 650 \text{ ps} \\ T_2 = 300 \text{ ps} \\ T_2^{\text{phonons}}(7K) = \mathcal{K} \Omega_R^2 \times 7K = 500 \text{ ps} \\ T_2^{**} = 1800 \text{ ps} \end{cases} \quad (4.114)$$

Le terme radiatif est souvent le même pour une grande partie des boîtes, tandis que le terme $T_2^{\text{phonons}}(7K)$ qui dépend de la pulsation de Rabi, ainsi que le terme de décohérence supplémentaire T_2^{**} , peuvent énormément varier d'une boîte à l'autre. Signalons que la présence d'un déphasage supplémentaire, non attribuable aux phonons, a déjà été observé par de nombreux groupes étudiant la largeur de la raie zéro-phonon, et attribué aux fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes [111, 151, 166, 177, 178]. D'après les valeurs trouvées (4.114), nous comprenons que dans la majorité des cas, ce terme de déphasage supplémentaire non lié aux phonons est donc négligeable devant celui induit par ceux-ci, voir nul comme c'est le cas pour la boîte présentée figure (4.21.a-b), même si dans

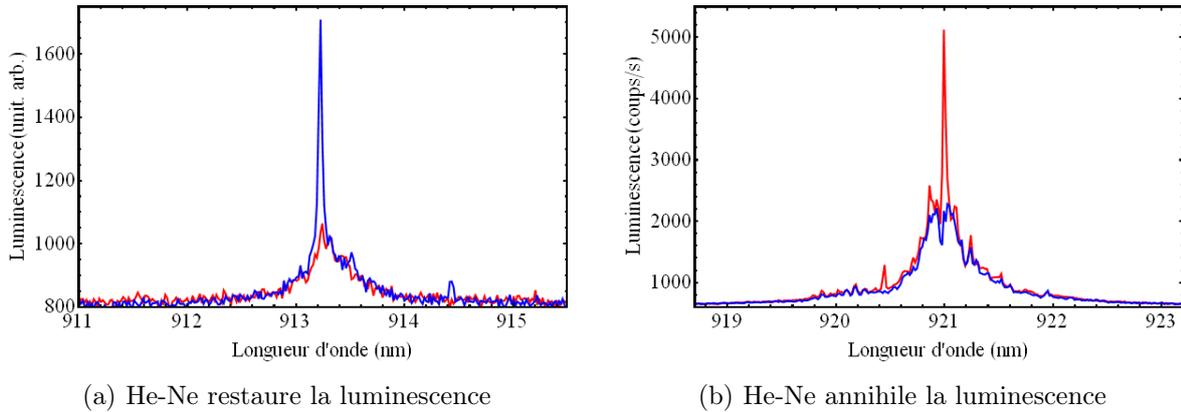


FIGURE 4.22 : Spectres de photoluminescence sous excitation résonnante pour deux boîtes quantiques. En rouge est représenté le spectre obtenu sans ajout d'un laser non-résonnant supplémentaire, en bleu le spectre obtenu lorsqu'un laser He-Ne de faible intensité est envoyé sur l'échantillon.

certains rares cas, comme c'est le cas pour la boîte présentée figure (4.21.c-d), il devient comparable à T_2^{phonons} .

Rôle de l'environnement électrostatique

L'importance de l'environnement électrostatique des boîtes a été étudié méthodiquement au Laboratoire Pierre Aigrain (LPA) [142, 179], où il a été mis en évidence l'effet d'un laser supplémentaire non résonnant, sur la luminescence de boîtes pompées à la résonance par un laser continu. En utilisant à notre tour un laser additionnel, nous avons pu observer une forte modification de la luminescence émise sous excitation résonnante, sans remarquer d'effet notable pour une excitation non résonnante.

De nombreuses boîtes dont nous observons la luminescence en excitant au niveau de la couche de mouillage, n'émettent plus lorsque le laser est résonnant avec la transition considérée. L'ajout d'un laser Helium-Néon de très faible intensité semble alors dans certains cas restaurer cette émission. Cela s'illustre sur la figure (4.22.a) où figure en rouge le spectre résonnant, sans laser additionnel et en bleu le spectre lorsque l'échantillon est de plus soumis au rayonnement de l'He-Ne. Il est important de noter que l'intensité de l'He-Ne est tellement faible que lorsqu'est coupé le laser résonnant, aucune luminescence n'est observable. À l'inverse, comme nous le voyons sur la figure (4.22.b), le laser non résonnant peut avoir pour effet d'annihiler une raie d'émission. Cet effet dépendrait de la charge de l'exciton correspondant à la transition considérée et le laser non résonnant restaurerait la luminescence d'excitons neutres et annihilerait celle d'excitons chargés [179]. Nous n'avons cependant pu le vérifier sur notre échantillon. En effet, pour différencier un exciton neutre d'un chargé, nous analysons la polarisation de leur luminescence sous excitation

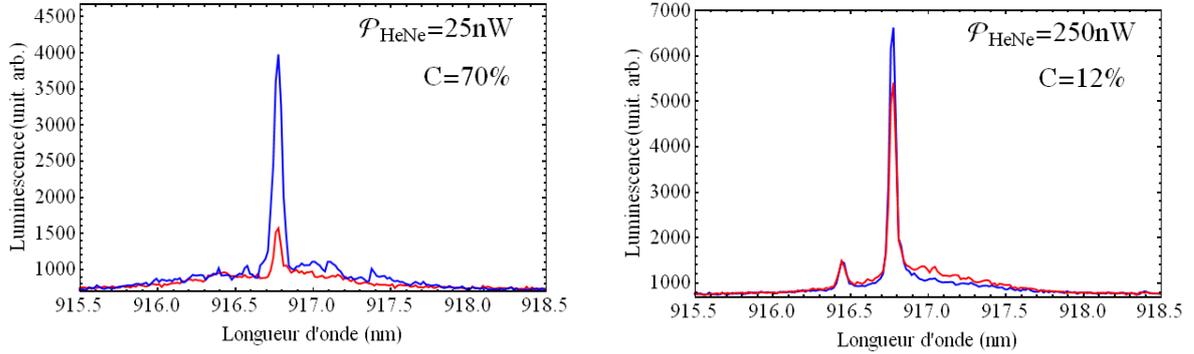


FIGURE 4.23 : Raie de luminescence sous excitation résonnante, après un analyseur vertical (bleu) ou horizontal (rouge), lorsqu'est appliqué un champ non résonnant supplémentaire de (a) 25 nW, (b) 250 nW.

résonnante, la polarisation du premier étant linéaire et celle du second elliptique. Or, nous avons observé une modification de cette polarisation en fonction de la l'intensité du champ non résonnant additionnel. Ainsi, comme le montre la figure (4.23), lorsque la puissance du laser He-Ne augmente, la polarisation de la raie de luminescence devient progressivement circulaire, sans que soit modifiée sa longueur d'émission. Ainsi, en multipliant par dix cette puissance, le taux de polarisation passe de 70% à 12%. Bien que la puissance du laser non résonnant ait été multipliée par dix dans la figure (4.23.b), celle-ci reste assez faible pour ne pas être responsable de la création d'une paire électron-trou dans la boîte considérée.

Pour finir, nous avons remarqué que le laser additionnel non résonnant semblait influencer sur la période des oscillations de Rabi. En effet, la figure (4.24) montre pour trois puissances de l'He-Ne les oscillations de Rabi obtenues. Nous voyons que la période d'oscillation augmente avec l'intensité du laser non résonnant et est multipliée par quatre lorsque la puissance de l'He-Ne est multipliée par dix. Bien que nous ne soyons pas en mesure pour l'instant d'expliquer nos observations expérimentales, celles-ci semblent témoigner de la présence de charges piégées dans l'environnement de la boîte, sur lesquelles le champ non résonnant aurait un effet. Ces charges pourraient être responsables de la perte de cohérence supplémentaire, indépendante de la température.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons détaillé l'étude des temps de relaxation caractéristiques, à savoir le temps de vie excitonique T_1 et le temps de cohérence T_2 , obtenus dans les boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs que nous avons étudiées. Ainsi, nous avons diffé-

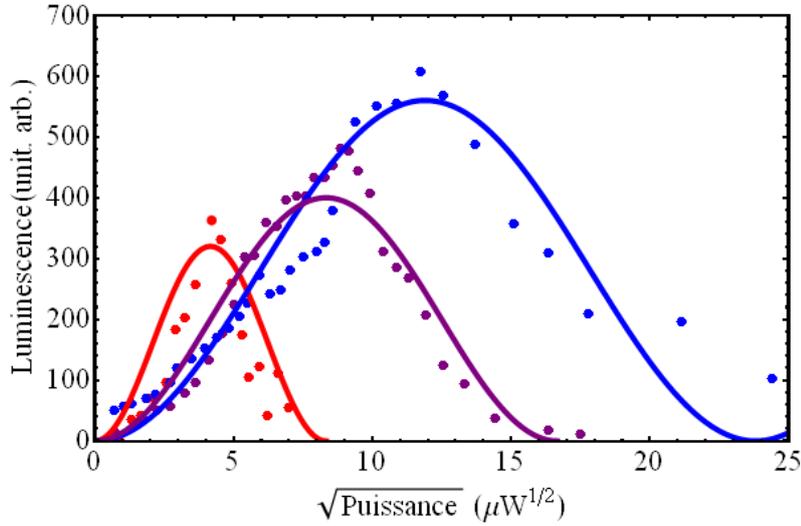


FIGURE 4.24 : Oscillations de Rabi obtenues pour différentes puissances de laser He-Ne : en rouge $\mathcal{P}_{HeNe} = 25 \text{ nW}$, en violet $\mathcal{P}_{HeNe} = 125 \text{ nW}$ et en bleu $\mathcal{P}_{HeNe} = 250 \text{ nW}$.

rençié le cas d'une excitation au niveau de la couche de mouillage pour lequel nous trouvons en moyenne $T_1^{nonres} = 1 \text{ ns}$ et $T_2^{nonres} = 400 \text{ ps}$ de celui d'une excitation résonante avec la transition étudiée pour lequel nous trouvons en moyenne $T_1^{res} = 650 \text{ ps}$ et $T_2^{res} = 300 \text{ ps}$. La différence de temps de vie peut s'expliquer par la présence d'un champ électrostatique dû aux porteurs piégés dans la couche de mouillage lorsque celle-ci est excitée, par la prise en compte d'un système à quatre niveaux lorsque l'excitation s'effectue à haute énergie, ou encore par l'effet des structures guidées présentes dans nos échantillons. L'écart entre les deux temps de cohérence semble lui indiquer que les mêmes processus de déphasage entrent en jeu, que l'excitation soit résonnante ou non.

Pour obtenir ces temps de relaxation, nous avons utilisé deux types de techniques expérimentales, en réalisant d'une part des mesures directes, de décroissance temporelle pour déterminer T_1 et de largeur de raie pour déterminer T_2 , pouvant être utilisées aussi bien dans le cas d'une excitation résonnante avec la transition que dans celui d'une excitation non résonnante, et d'autre part des expériences de contrôle cohérent nous donnant accès, à la résonance, aux deux temps de relaxation. Cette deuxième méthode a révélé un comportement plus complexe que nous le pensions de notre système, mettant une fois de plus à mal la modélisation de l'état des boîtes quantiques par un système à deux niveaux. En effet, alors que dans le cas d'impulsions d'aire $\theta = \pi$, nous nous attendions à annuler le terme de cohérence de la population de l'état excité, nous nous sommes rendu compte que c'était loin d'être le cas. Il nous est en réalité impossible, quelle que soit l'aire des impulsions interagissant avec le système, d'annuler ce terme.

D'après les valeurs de T_1 et T_2 obtenues sous excitation résonnante, nous remarquons une forte différence entre les temps de cohérence mesurés et leur limite radiative $2T_1$, témoignant ainsi de la présence de processus de déphasage pur. Pour approfondir l'étude de ces processus de décohérence supplémentaires, nous avons réalisé des mesures de temps de cohérence en fonction de la température de l'échantillon. Nous avons ainsi identifié les phonons acoustiques comme principaux responsables de cette perte de cohérence, en remarquant toutefois que pour certaines boîtes, une décohérence subsiste à température nulle, sans que nous ne puissions en expliquer l'origine.

Finalement, des mesures de temps de vie sous excitation résonnante pour différentes intensités de l'onde incidente montrent, pour la grande majorité des boîtes étudiées, des valeurs ne variant pas ou peu avec la puissance d'excitation. Pour certaines boîtes cependant, une évolution inversement proportionnelle à la puissance d'excitation, confirmant l'ajout du terme de relaxation $\alpha\Omega_R^2$ intégré dans les équations de Bloch optiques pour modéliser les oscillations de Rabi s'amortissant vers une valeur nulle.

Chapitre 5

Polarisation de l'émission d'une boîte quantique

Sommaire

5.1	Émission d'une boîte quantique anisotrope	188
5.1.1	États propres d'une boîte à symétrie de révolution	188
5.1.2	Brisure de symétrie, interaction d'échange électron-trou	190
5.2	Mélange trous lourds - trous légers	191
5.2.1	Origine physique	191
5.2.2	Effets du mélange dans le plan des boîtes (xy)	198
5.2.2.a	Les états propres	198
5.2.2.b	Intensité d'émission	199
5.2.3	Effets du mélange dans le plan perpendiculaire (yz)	209
5.2.3.a	Les états propres	209
5.2.3.b	Intensité d'émission	212
5.3	Résultats expérimentaux	215
5.3.1	Principe des mesures en polarisation	215
5.3.2	Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation non résonante	216
5.3.2.a	Protocole expérimental	217
5.3.2.b	Constatations expérimentales	219
5.3.2.c	Statistiques et interprétations	222
5.3.3	Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation résonante	227
5.3.4	Polarisation de la luminescence suivant l'axe de croissance sous excitation non résonante	230

Comme nous l'avons déjà indiqué à la fin du premier chapitre, dans une boîte où le potentiel de confinement est anisotrope, en raison de l'interaction coulombienne d'échange longue portée, l'exciton neutre possède une structure fine. Cette interaction seule ne parvient cependant pas à rendre compte de certaines de nos observations expérimentales : des états propres excitoniques non perpendiculaires entre eux et une différence dans leur intensité d'émission sous excitation non résonnante. Ces constatations nous ont poussés à considérer de plus près la polarisation de la luminescence émise par les boîtes lors de la recombinaison de l'exciton neutre. Ainsi, dans ce chapitre, après avoir brièvement rappelé l'effet de l'interaction d'échange sur l'émission des boîtes quantiques, nous présenterons l'explication que nous apportons aux deux constats précédents, à savoir des états excitoniques dans lesquels les états de trous sont une combinaison linéaire de trous lourds et de trous légers. Nous décrirons alors dans un premier temps ces nouveaux états, pour ensuite démontrer comment ils rendent parfaitement compte de nos résultats expérimentaux. Finalement, nous verrons comment au moyen d'expériences résolues en polarisation, réalisées sous excitation non résonnante puis résonnante, nous sommes capables [180] d'obtenir les directions des axes propres de la transition excitonique, les paramètres caractérisant le mélange "trous lourds - trous légers" et le rapport entre les forces d'oscillateur des deux transitions.

5.1 Émission d'une boîte quantique anisotrope

5.1.1 États propres d'une boîte à symétrie de révolution

Commençons par nous intéresser à l'émission d'une boîte quantique idéale à base circulaire, n'étant soumise à aucune contrainte et dont les deux états propres brillants $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ sont dégénérés en énergie (potentiel de confinement de symétrie D_{2d}). Ces états sont formés à partir des états de valence et de conduction :

$$\begin{cases} |+1\rangle : & \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\ |-1\rangle : & \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \end{cases} \quad (5.1)$$

soit :

$$\begin{cases} |+1\rangle : & i|S \downarrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & -\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\ |-1\rangle : & i|S \uparrow\rangle \otimes |\chi_c\rangle & \leftrightarrow & \frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \end{cases} \quad (5.2)$$

où nous avons adopté pour les parties atomiques la notation $|J_{at}; m_{J_{at}}\rangle_n$ et où $|\chi_c\rangle$ et $|\chi_v^{hh}\rangle$ sont respectivement la fonction enveloppe de l'électron de conduction et celle de l'électron de valence de la bande de moment $m_J = \pm 3/2$.

Comme nous l'avons déjà présenté dans le premier chapitre, l'émission de ces deux états lors de la recombinaison radiative de l'exciton est polarisée circulairement, respectivement gauche et droite. En effet, considérons les éléments de matrice mis en jeu lors de ces transitions :

$$\langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \langle \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \rangle_v \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle + \langle \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \rangle_v \langle \chi_c | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \chi_v^{hh} \rangle \quad (5.3)$$

Le second terme étant nul pour une transition inter-bande, en posant $\alpha_{env} = \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle$ le recouvrement des fonctions enveloppes, nous trouvons :

$$\begin{aligned} \langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle &= \alpha_{env} (-i \langle S \downarrow |) \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} \left(-\frac{1}{\sqrt{2}} |(X - iY) \downarrow \rangle \right) \\ &= \alpha_{env} \left(\frac{i}{\sqrt{2}} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | X \rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | Y \rangle \right) \end{aligned} \quad (5.4)$$

De même :

$$\begin{aligned} \langle -1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle &= \langle \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \rangle_v \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle + \langle \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \rangle_v \langle \chi_c | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \chi_v^{hh} \rangle \\ &= \alpha_{env} (-i \langle S \uparrow |) \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow \rangle \right) \\ &= \alpha_{env} \left(-\frac{i}{\sqrt{2}} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | X \rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | Y \rangle \right) \end{aligned} \quad (5.5)$$

où $\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}_L$ est le terme de couplage du système à deux niveaux de moment dipolaire moyen $\boldsymbol{\mu}$ avec le champ \mathbf{E}_L . En posant :

$$\begin{cases} \xi_x = \alpha_{env} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | X \rangle \\ \xi_y = \alpha_{env} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | Y \rangle \\ \xi_z = \alpha_{env} \langle S | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | Z \rangle \end{cases} \quad (5.6)$$

nous obtenons alors :

$$\begin{cases} \langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}} \xi_x + \frac{1}{\sqrt{2}} \xi_y \\ \langle -1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = -\frac{i}{\sqrt{2}} \xi_x + \frac{1}{\sqrt{2}} \xi_y \end{cases} \quad (5.7)$$

Sous excitation non résonnante, nous considérons que les deux états sont identiquement peuplés, c'est à dire que nous pouvons poser $|\xi_x| = |\xi_y| = |\xi_z| = \xi$, nous retrouvons bien alors une polarisation circulaire (gauche ou droite).

5.1.2 Brisure de symétrie, interaction d'échange électron-trou

Supposons maintenant que le potentiel de confinement de la boîte quantique sans contraintes, présente une élongation selon l'un des axes cristallographiques. Il a en effet été constaté [58, 181, 182, 183, 184, 185] que dans les boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs, celui-ci avait tendance à être étiré selon la direction $[1\bar{1}0]$, définissant ici la direction de l'axe y , tandis que l'axe x est défini par la direction $[110]$. Dans ce cas de figure, comme nous l'avons démontré dans le premier chapitre, l'interaction coulombienne d'échange électron-trou permet de lever la dégénérescence des états $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ et les nouveaux états propres brillants excitoniques $|X\rangle$ et $|Y\rangle$ sont alors des combinaisons linéaires de la forme :

$$\begin{cases} |X\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - |-1\rangle) \\ |Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + |-1\rangle) \end{cases} \quad (5.8)$$

dont l'émission est polarisée linéairement selon les directions $[110]$ et $[1\bar{1}0]$:

$$\begin{cases} \langle X|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(\langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle - \langle 1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle) = \xi_x \\ \langle Y|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(\langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle + \langle 1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle) = \xi_y \end{cases} \quad (5.9)$$

où, sous excitation non résonnante, nous pouvons poser $|\xi_x| = |\xi_y| = |\xi_z| = \xi$. Nous voyons donc que l'intensité d'émission doit, dans ce cas de figure, être la même pour les deux états, comme l'illustre la figure (5.1.a), qui montre les diagrammes polaires de l'émission d'une boîte dont le potentiel de confinement est allongé suivant $[1\bar{1}0]$.

En considérant le cas plus général d'un potentiel de confinement présentant une élongation selon une direction y' faisant un angle θ avec la direction $[1\bar{1}0]$, comme le schématise la figure (5.1.b), et en choisissant par convention les états propres excitoniques :

$$\begin{cases} |X'\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+1\rangle - e^{2i\theta} |-1\rangle) \\ |Y'\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+1\rangle + e^{2i\theta} |-1\rangle) \end{cases} \quad (5.10)$$

nous déterminons que leur émission est polarisée linéairement selon les directions x' et y' faisant un angle θ avec les directions cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$:

$$\begin{cases} \langle X'|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \frac{e^{i\theta}}{i\sqrt{2}}(\langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle e^{-i\theta} - \langle 1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle e^{i\theta}) = e^{i\theta}(\cos\theta \xi_x - \sin\theta \xi_y) \\ \langle Y'|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle = \frac{e^{i\theta}}{\sqrt{2}}(\langle +1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle e^{-i\theta} + \langle 1|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle e^{i\theta}) = e^{i\theta}(\sin\theta \xi_x + \cos\theta \xi_y) \end{cases} \quad (5.11)$$

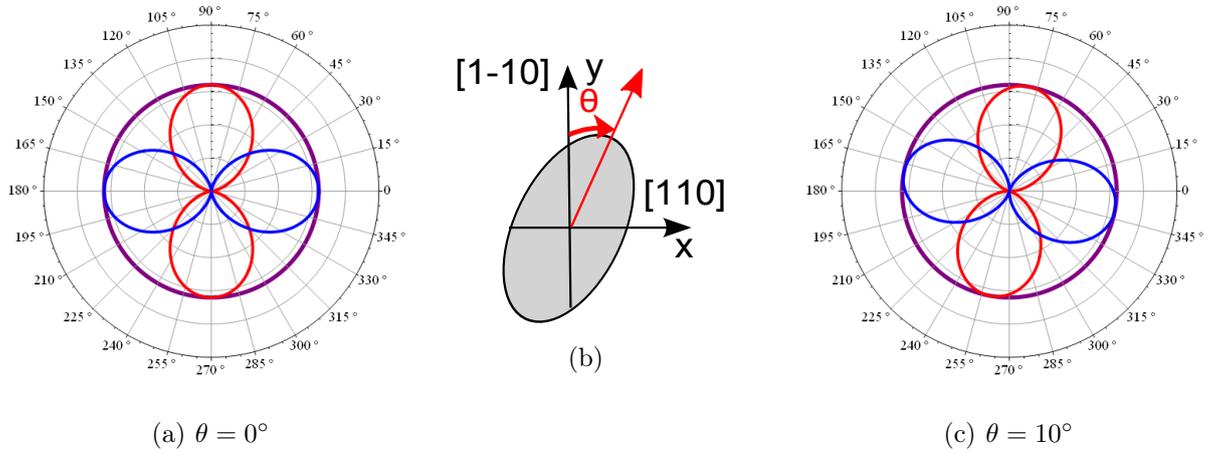


FIGURE 5.1 : Diagrammes polaires des états propres d'une boîte quantique dont le potentiel de confinement est allongé (a) suivant la direction cristallographique $[1\bar{1}0]$ et (c) suivant une direction définie par l'angle $\theta = 10^\circ$ par rapport à cette direction cristallographique, comme le montre la figure (b) représentant l'allongement du potentiel de confinement d'une boîte. Sur les figure (a) et (c) sont représentés : en rouge les états $|Y\rangle$, en bleu les états $|X\rangle$ et en violet l'intensité d'émission totale.

De même ici, les intensités d'émission des deux états $I_{X'} = |\langle X' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$ et $I_{Y'} = |\langle Y' | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle|^2$ sont les mêmes lorsque l'excitation s'effectue à haute énergie, comme le montre les diagrammes polaires de la figure (5.1.c), où le potentiel de confinement est allongé selon une direction définie par l'angle $\theta = +10^\circ$ avec $[1\bar{1}0]$.

Nous voyons que dans les deux cas (5.1.a) et (5.1.c), l'intensité d'émission est la même pour les deux états propres et polarisée selon des directions définies par l'angle θ (parallèle et perpendiculaire). Les deux états restent donc toujours perpendiculaires entre eux.

Cependant, ces prévisions théoriques sont bien loin de nos observations expérimentales. Pour rendre compte de ces dernières, nous allons donc par la suite considérer que les excitons ne sont plus uniquement formés d'un électron de conduction et d'un trou lourd, et allons intégrer une composante de trou léger dans l'expression des états de valence.

5.2 Mélange trous lourds - trous légers

5.2.1 Origine physique

En raison du confinement des porteurs de charge, dans les boîtes quantiques (tout comme dans les puits et les fils), la dégénérescence des deux bandes de valence Γ_8 est levée, et la bande de trous légers est rejetée à plus basse énergie que celle de trous lourds. Nous avons de ce fait jusqu'à présent considéré que la différence d'énergie (quelques di-

zaines de meV [186]) entre ces deux bandes était assez importante pour ne considérer dans nos systèmes uniquement des excitons dits "lourds", formés d'un électron de conduction de moment $m_J = \pm 1/2$ et d'un électron de valence de moment $m_J = \pm 3/2$. Cependant, cette vision des choses semble erronée, en particulier dans le cas des boîtes auto-organisées que nous étudions, qui sont soumises à des contraintes, résultant entre autre de la différence de paramètre de maille entre les matériaux constituant l'hétéro-structure, et modifiant leur structure électronique.

De même que Kane, Luttinger et Kohn ont réalisé (en utilisant la théorie des groupes) un modèle décrivant la structure de la bande de valence au voisinage de $\mathbf{k} \approx \mathbf{0}$, prenant cette fois en compte les propriétés de symétrie du cristal [49, 187]. Celui-ci permet d'obtenir dans la base des états $\Gamma_8 \{|u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle; |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle; |u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle\}$ le hamiltonien (4×4) :

$$\begin{pmatrix} P_{LK} + Q_{LK} - E_g & S_{LK} & R_{LK} & 0 \\ S_{LK}^\dagger & P_{LK} - Q_{LK} - E_g & 0 & R_{LK} \\ R_{LK}^\dagger & 0 & P_{LK} - Q_{LK} - E_g & -S_{LK} \\ 0 & R_{LK}^\dagger & -S_{LK}^\dagger & P_{LK} + Q_{LK} - E_g \end{pmatrix} \quad (5.12)$$

avec E_g le gap du matériau considéré et :

$$\begin{cases} P_{LK} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \gamma_1 (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \\ Q_{LK} = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \gamma_2 (k_x^2 + k_y^2 - 2k_z^2) \\ R_{LK} = \frac{\hbar^2}{2m_e} \sqrt{3} (\gamma_2 (k_x^2 - k_y^2) - 2i \gamma_3 k_x k_y) \\ S_{LK} = \frac{\hbar^2}{2m_e} 2\sqrt{3} \gamma_3 (k_x - ik_y)k_z \end{cases} \quad (5.13)$$

γ_1 , γ_2 and γ_3 sont les paramètres de Luttinger, reflétant le couplage entre les différentes bandes dans un cristal donné, et m_e la masse libre de l'électron. Rappelons que l'origine des énergies a ici été prise en bas de la bande de conduction. Dans le tableau (5.1) sont donnés les paramètres de Luttinger du GaAs et de l'InAs massifs. Les états propres d'un tel hamiltonien sont de la forme :

$$|\psi_{m'}^v\rangle = \sum_m C_{m'm} |u_m^v\rangle \otimes |\chi_v^m\rangle \quad (5.14)$$

En considérant maintenant le hamiltonien de couplage, dans la base des états atomiques

paramètres	GaAs	InAs
γ_1	7	19.67
γ_2	2.25	8.37
γ_3	2.9	9.29

TABLE 5.1 : Tableau récapitulatif des paramètre de Luttinger de GaAs et InAs massifs [188].

$\{|u_{3/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle; |u_{-3/2}^v\rangle\}$, la matrice de Luttinger-Kohn peut se réécrire :

$$\begin{pmatrix} E^{hh} & \mathcal{L} & \mathcal{M} & 0 \\ \mathcal{L}^* & E^{lh} & 0 & \mathcal{M} \\ \mathcal{M}^* & 0 & E^{lh} & -\mathcal{L} \\ 0 & \mathcal{M}^* & -\mathcal{L}^* & E^{hh} \end{pmatrix} \quad (5.15)$$

où :

$$\begin{cases} \mathcal{M} = \langle \chi_v^{hh} | R_{LK} | \chi_v^{lh} \rangle \\ \mathcal{L} = \langle \chi_v^{hh} | S_{LK} | \chi_v^{lh} \rangle \end{cases} \quad (5.16)$$

En diagonalisant le hamiltonien (5.15), nous trouvons des états propres mélangés (trous lourds et légers) :

– états mélangés h_+ :

$$E^{hh} \rightarrow E_+ = \frac{E^{hh} + E^{lh}}{2} + \sqrt{\left(\frac{E^{hh} - E^{lh}}{2}\right)^2 + |\mathcal{L}|^2 + |\mathcal{M}|^2} \quad (5.17)$$

$$\begin{cases} |u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \rightarrow C_{\frac{3}{2}, \frac{3}{2}} |u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \left(C_{\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}} |u_{-1/2}^v\rangle + C_{\frac{3}{2}, \frac{1}{2}} |u_{1/2}^v\rangle\right) \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \\ |u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \rightarrow C_{-\frac{3}{2}, -\frac{3}{2}} |u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \left(C_{-\frac{3}{2}, -\frac{1}{2}} |u_{-1/2}^v\rangle + C_{-\frac{3}{2}, \frac{1}{2}} |u_{1/2}^v\rangle\right) \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \end{cases} \quad (5.18)$$

– états mélangés h_- :

$$E^{lh} \rightarrow E_- = \frac{E^{hh} + E^{lh}}{2} - \sqrt{\left(\frac{E^{hh} - E^{lh}}{2}\right)^2 + |\mathcal{L}|^2 + |\mathcal{M}|^2} \quad (5.19)$$

$$\begin{cases} |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \rightarrow C_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}} |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle + \left(C_{\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}} |u_{-3/2}^v\rangle + C_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}} |u_{3/2}^v\rangle\right) \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \\ |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \rightarrow C_{-\frac{1}{2}, -\frac{1}{2}} |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle + \left(C_{-\frac{1}{2}, -\frac{3}{2}} |u_{-3/2}^v\rangle + C_{-\frac{1}{2}, \frac{3}{2}} |u_{3/2}^v\rangle\right) \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \end{cases} \quad (5.20)$$

Nous venons de voir comment le modèle de Luttinger-Kohn peut induire un mélange des états de valence lourds et légers et sur la figure (5.2) est schématisé l'effet de ce mélange sur l'énergie des états de valence Γ_8 .

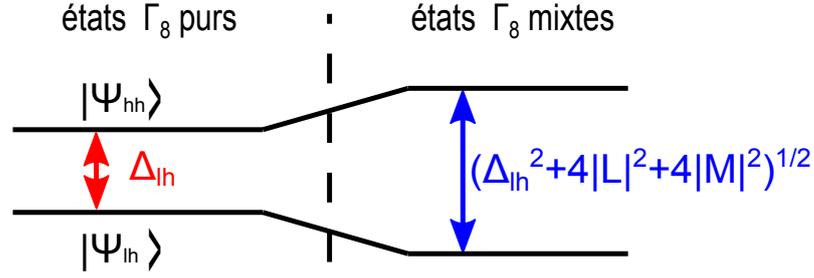


FIGURE 5.2 : Effet du mélange sur l'énergie des états de valence Γ_8 .

Par ailleurs dans nos échantillons, lors de la croissance en régime Stranski-Krastanov, les contraintes sont à l'origine de la formation des boîtes quantiques. La croissance achevée, le champ des contraintes représenté par le tenseur des déformations ϵ_{ij} reste important au sein de l'échantillon et modifie ainsi la structure électronique des boîtes [189, 190, 191]. Ainsi, une déformation transformant les trois vecteurs orthonormés \mathbf{u}_x , \mathbf{u}_y et \mathbf{u}_z en :

$$\begin{cases} \mathbf{u}'_x = (1 + \epsilon'_{xx})\mathbf{u}_x + \epsilon'_{xy}\mathbf{u}_y + \epsilon'_{xz}\mathbf{u}_z \\ \mathbf{u}'_y = \epsilon'_{yx}\mathbf{u}_x + (1 + \epsilon'_{yy})\mathbf{u}_y + \epsilon'_{yz}\mathbf{u}_z \\ \mathbf{u}'_z = \epsilon'_{zx}\mathbf{u}_x + \epsilon'_{zy}\mathbf{u}_y + (1 + \epsilon'_{zz})\mathbf{u}_z \end{cases} \quad (5.21)$$

déplace un atome initialement en $\mathbf{r} = x\mathbf{u}_x + y\mathbf{u}_y + z\mathbf{u}_z$ de :

$$\mathbf{R} = \mathbf{r}' - \mathbf{r} = x(\mathbf{u}'_x - \mathbf{u}_x) + y(\mathbf{u}'_y - \mathbf{u}_y) + z(\mathbf{u}'_z - \mathbf{u}_z) \quad (5.22)$$

soit :

$$\mathbf{R} = R_x\mathbf{u}_x + R_y\mathbf{u}_y + R_z\mathbf{u}_z \quad (5.23)$$

avec :

$$\begin{cases} R_x = x\epsilon'_{xx} + y\epsilon'_{yx} + z\epsilon'_{zx} \\ R_y = x\epsilon'_{xy} + y\epsilon'_{yy} + z\epsilon'_{zy} \\ R_z = x\epsilon'_{xz} + y\epsilon'_{yz} + z\epsilon'_{zz} \end{cases} \quad (5.24)$$

Les composantes diagonales du tenseur des déformation peuvent alors être définies par :

$$\begin{cases} \epsilon_{xx} = \epsilon'_{xx} = \frac{\partial R_x}{\partial x} \\ \epsilon_{yy} = \epsilon'_{yy} = \frac{\partial R_y}{\partial y} \\ \epsilon_{zz} = \epsilon'_{zz} = \frac{\partial R_z}{\partial z} \end{cases} \quad (5.25)$$

et les composantes non diagonales par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \epsilon_{xy} = \frac{\epsilon'_{xy} + \epsilon'_{yx}}{2} = \frac{\partial R_x}{\partial y} + \frac{\partial R_y}{\partial x} \\ \epsilon_{yz} = \frac{\epsilon'_{yz} + \epsilon'_{zy}}{2} = \frac{\partial R_y}{\partial z} + \frac{\partial R_z}{\partial y} \\ \epsilon_{zx} = \frac{\epsilon'_{zx} + \epsilon'_{xz}}{2} = \frac{\partial R_z}{\partial x} + \frac{\partial R_x}{\partial z} \end{array} \right. \quad (5.26)$$

avec $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$. Deux parties se distinguent alors, une composante dite "hydrostatique" :

$$\epsilon_{hydro} = \frac{1}{3}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \quad (5.27)$$

qui déplace globalement la maille, tout en préservant la symétrie du milieu, et une composante de "cisaillement" :

$$\epsilon_{cisail} = \epsilon_{ij} - \epsilon_{hydro} \quad (5.28)$$

dont résulte l'anisotropie du système contraint.

Bir et Pikus ont étudié l'effet des contraintes sur la structure de bande des semi-conducteurs [73, 192] et obtenu un hamiltonien ayant la même forme que celui de Luttinger et Kohn, mais en remplaçant cette fois les composantes du vecteur d'onde par celles du tenseur des déformations ϵ_{ij} et les paramètres de Luttinger par les potentiels de déformation a_v , b_v et d_v . La matrice de Bir-Pikus est ainsi de la forme :

$$\left(\begin{array}{cccc} P_{BP} + Q_{BP} - E_g & S_{BP} & R_{BP} & 0 \\ S_{BP}^\dagger & P_{BP} - Q_{BP} - E_g & 0 & R_{BP} \\ R_{BP}^\dagger & 0 & P_{BP} - Q_{BP} - E_g & -S_{BP} \\ 0 & R_{BP}^\dagger & -S_{BP}^\dagger & P_{BP} + Q_{BP} - E_g \end{array} \right) \quad (5.29)$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} P_{BP} = a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \\ Q_{BP} = \frac{b_v}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) \\ R_{BP} = \frac{\sqrt{3}}{2}b_v(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) - id_v\epsilon_{xy} \\ S_{BP} = d_v(\epsilon_{zx} - i\epsilon_{yz}) \end{array} \right. \quad (5.30)$$

a_v est le potentiel de déformation hydrostatique, b_v et d_v sont les potentiels de déformation de cisaillement selon les directions cristallographiques [001] (axe z) et [111]. Les ϵ_{ij} représentent les composantes du tenseur des déformations. Ce hamiltonien, comme celui de Luttinger-Kohn, couple les états de trous lourds et légers et en le diagonalisant, nous trouvons des états mixtes du type (5.18) et (5.20).

Prenant en compte, pour une description complète, le hamiltonien de Luttinger-Kohn et celui de Bir-Pikus, nous obtenons dans la base $\{|u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle; |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle; |u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle\}$ le hamiltonien :

$$\begin{pmatrix} P+Q-E_g & R & S & 0 \\ R^\dagger & P-Q-E_g & 0 & -S \\ S^\dagger & 0 & P-Q-E_g & R \\ 0 & -S^\dagger & R^\dagger & P+Q-E_g \end{pmatrix} \quad (5.31)$$

avec :

$$\begin{cases} P = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \gamma_1 (\tilde{k}_x^2 + \tilde{k}_y^2 + \tilde{k}_z^2) + a_v(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} + \epsilon_{zz}) \\ Q = -\frac{\hbar^2}{2m_e} \gamma_2 (\tilde{k}_x^2 + \tilde{k}_y^2 - 2\tilde{k}_z^2) + \frac{b_v}{2}(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} - 2\epsilon_{zz}) \\ R = \frac{\hbar^2}{2m_e} \sqrt{3} [\gamma_2 (\tilde{k}_x^2 - \tilde{k}_y^2) - 2i \gamma_3 \tilde{k}_x \tilde{k}_y] + \frac{\sqrt{3}}{2} b_v(\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) - i d_v \epsilon_{xy} \\ S = \frac{\hbar^2}{2m_e} 2\sqrt{3} \gamma_3 (\tilde{k}_x - i\tilde{k}_y) \tilde{k}_z + d_v(\epsilon_{zx} - i\epsilon_{yz}) \end{cases} \quad (5.32)$$

\tilde{k}_x , \tilde{k}_y et \tilde{k}_z sont les composantes du vecteur d'onde de l'électron, modifiées par les contraintes. En effet, le solide déformé étant différent du solide non déformé, il est généralement plus simple de tenir compte de cette déformation en modifiant les vecteurs d'onde plutôt que les paramètres cristallins [43]. Pour alléger l'écriture, nous pouvons réécrire (5.31) dans la base des états atomiques $\{|u_{3/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle; |u_{-3/2}^v\rangle\}$ sous la forme :

$$\begin{pmatrix} E^{hh} & \rho e^{-2i\psi} & \sigma & 0 \\ \rho e^{2i\psi} & E^{hh} - \Delta_{lh} & 0 & -\sigma \\ \sigma^* & 0 & E^{hh} - \Delta_{lh} & \rho e^{-2i\psi} \\ 0 & -\sigma^* & \rho e^{2i\psi} & E^{hh} \end{pmatrix} \quad (5.33)$$

où Δ_{lh} est la différence en énergie entre les trous lourds et légers, ρ_c et $|\sigma_c|$ rendent compte de l'amplitude du couplage entre les différentes bandes de valence, ψ est la direction d'anisotropie du système, dans le plan des boîtes, par rapport à la direction $[1\bar{1}0]$ et :

$$\begin{cases} \rho e^{-2i\psi} = \langle \chi_v^{hh} | R | \chi_v^{lh} \rangle \\ \sigma = \langle \chi_v^{hh} | S | \chi_v^{lh} \rangle \end{cases} \quad (5.34)$$

En ne considérant pas pour l'instant le terme σ qui n'a d'influence que dans le plan perpendiculaire à celui des boîtes, nous pouvons facilement diagonaliser le hamiltonien :

$$\begin{pmatrix} E^{hh} & \rho e^{-2i\psi} & 0 & 0 \\ \rho e^{2i\psi} & E^{hh} - \Delta_{lh} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & E^{hh} - \Delta_{lh} & \rho e^{-2i\psi} \\ 0 & 0 & \rho e^{2i\psi} & E^{hh} \end{pmatrix} \quad (5.35)$$

Nous trouvons :

- les états mélangés h_+ d'énergie E_+ :

$$E_+ = E^{hh} - \frac{\Delta_{lh}}{2} + \sqrt{\left(\frac{\Delta_{lh}}{2}\right)^2 + \rho^2} \quad (5.36)$$

Dans la base $\{|u_{3/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle\}$, une infinité de vecteurs propres $\begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix}$ tels que :

$$v = \frac{\rho e^{2i\psi}}{E_+ - E^{hh} + \Delta_{lh}} \quad (5.37)$$

peuvent être associés à l'énergie E_+ et il en est de même dans la base $\{|u_{-3/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle\}$. En choisissant u de façon à ce que les états mixtes soient normalisés ($|u|^2 + |v|^2 = 1$), nous obtenons :

- dans la base $\{|u_{3/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle\}$:

$$\sqrt{\frac{\Delta_{lh}^2 + 2\rho^2 + \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2 + \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}} \left(|u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \frac{2\rho e^{2i\psi}}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right) \quad (5.38)$$

- dans la base $\{|u_{-3/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle\}$:

$$\sqrt{\frac{\Delta_{lh}^2 + 2\rho^2 + \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2 + \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}} \left(|u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \frac{2\rho e^{2i\psi}}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right) \quad (5.39)$$

- les états mélangés h_- d'énergie E_- :

$$E_- = E^{hh} - \frac{\Delta_{lh}}{2} - \sqrt{\left(\frac{\Delta_{lh}}{2}\right)^2 + \rho^2} \quad (5.40)$$

De même que dans le cas des états d'énergie E_+ , une infinité de vecteurs propres sont associés à l'énergie E_- , et nous choisissons :

- dans la base $\{|u_{3/2}^v\rangle; |u_{-1/2}^v\rangle\}$:

$$\sqrt{\frac{\Delta_{lh}^2 + 2\rho^2 - \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2 - \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}} \left(|u_{3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \frac{2\rho e^{2i\psi}}{\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} |u_{-1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right) \quad (5.41)$$

- dans la base $\{|u_{-3/2}^v\rangle; |u_{1/2}^v\rangle\}$:

$$\sqrt{\frac{\Delta_{lh}^2 + 2\rho^2 - \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2 - \Delta_{lh}\sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}} \left(|u_{-3/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \frac{2\rho e^{2i\psi}}{\Delta_{lh} - \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} |u_{1/2}^v\rangle \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \right) \quad (5.42)$$

5.2.2 Effets du mélange dans le plan des boîtes (xy)

5.2.2.a Les états propres

Nous venons de voir que l'énergie des états mélangés est modifiée par rapport à celle des états purs et l'écart en énergie entre les états h_+ et h_- est supérieure à l'écart énergétique Δ_{lh} entre les états lourds et légers (écart que nous considérons déjà trop grand pour qu'il soit possible de créer des excitons légers). Nous pouvons alors ne prendre en compte que les états h_+ et les excitons brillants seront formés à partir des états :

$$\begin{cases} |+\tilde{1}\rangle : & \left| \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \beta^{hh} \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \beta^{lh} \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \\ |-\tilde{1}\rangle : & \left| \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_c \otimes |\chi_c\rangle \leftrightarrow \beta^{hh} \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{hh}\rangle + \beta^{lh} \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v \otimes |\chi_v^{lh}\rangle \end{cases} \quad (5.43)$$

β^{hh} et β^{lh} sont des nombres complexes dont le module au carré représente respectivement la proportion de trous lourds et celle de trous légers dans le mélange. Nous avons pour l'instant négligé le mélange entre états lourds et légers de même spin (relié au paramètre σ de la matrice (5.35)) et par identification aux expressions (5.38) et (5.39), nous pouvons relier les paramètres de mélange β^{hh} et β^{lh} aux paramètres de Luttinger et de déformation. Pour des raisons de simplicité, choisissons de mettre les états mélangés h_+ sous la forme $|\tilde{\downarrow}_v\rangle$ et $|\tilde{\uparrow}_v\rangle$, de sorte que :

$$\begin{cases} \langle \chi_c | \left(|\tilde{\downarrow}_v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \right) = \left(\sqrt{1-\beta^2} \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v + \beta e^{2i\psi} \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v \right) \langle \chi_c | \chi_v^{hh}\rangle \\ \langle \chi_c | \left(|\tilde{\uparrow}_v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle \right) = \left(\sqrt{1-\beta^2} \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v + \beta e^{-2i\psi} \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v \right) \langle \chi_c | \chi_v^{hh}\rangle \end{cases} \quad (5.44)$$

où β rend compte de la proportion de trous légers β^{lh} dans le mélange, mais aussi du rapport :

$$\mathfrak{R} = \frac{\int d\mathbf{r} \chi_c(\mathbf{r}) \chi_v^{lh}(\mathbf{r})}{\int d\mathbf{r} \chi_c(\mathbf{r}) \chi_v^{hh}(\mathbf{r})} \quad (5.45)$$

du recouvrement des fonctions enveloppe des trous lourds et légers avec celle de l'électron de conduction. Ce nouveau paramètre a ainsi pour expression, d'après (5.38) et (5.39) :

$$\beta = \frac{2\rho}{\Delta_{lh} + \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}} \sqrt{\frac{\Delta_{lh}^2 + 2\rho^2 + \Delta_{lh} \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2 + \Delta_{lh} \sqrt{\Delta_{lh}^2 + 4\rho^2}}} \frac{\int d\mathbf{r} \chi_c(\mathbf{r}) \chi_v^{lh}(\mathbf{r})}{\int d\mathbf{r} \chi_c(\mathbf{r}) \chi_v^{hh}(\mathbf{r})} \quad (5.46)$$

où :

$$\rho^2 = |\langle \chi_v^{hh} | R | \chi_v^{lh} \rangle|^2 \quad (5.47)$$

avec :

$$R = \frac{\hbar^2}{2m_0} \sqrt{3} (\tilde{\gamma}_2 (k_x^2 - k_y^2) - 2i \tilde{\gamma}_3 k_x k_y) + \frac{\sqrt{3}}{2} b_v (\epsilon_{xx} - \epsilon_{yy}) - i d_v \epsilon_{xy} \quad (5.48)$$

5.2.2.b Intensité d'émission

En utilisant les expressions (5.44), les éléments de matrice entrant en jeu lors de la recombinaison radiatives des excitons brillants dans la boîte sont :

1. pour l'état $|+\tilde{1}\rangle$:

$$\begin{aligned} \langle +\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle &= \langle \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \tilde{\downarrow}_v \rangle \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \\ &= \alpha_{env} (-i \langle S \downarrow |) \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} \left(-\sqrt{\frac{1-\beta^2}{2}} |(X-iY) \downarrow \rangle \right. \\ &\quad \left. + \frac{\beta e^{-2i\psi}}{\sqrt{6}} |(X+iY) \downarrow \rangle - \beta e^{2i\psi} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \uparrow \rangle \right) \end{aligned} \quad (5.49)$$

Comme le hamiltonien dipolaire ne peut coupler entre eux que des états de même spin, cet élément de matrice a pour composantes :

– selon x :

$$\langle +\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1-\beta^2} - \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{2i\psi} \right) \xi_x \quad (5.50)$$

– selon y :

$$\langle +\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1-\beta^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{2i\psi} \right) \xi_y \quad (5.51)$$

2. pour l'état $|-\tilde{1}\rangle$:

$$\begin{aligned} \langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle &= \langle \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \tilde{\uparrow}_v \rangle \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \\ &= \alpha_{env} (-i \langle S \uparrow |) \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} \left(\sqrt{\frac{1-\beta^2}{2}} |(X+iY) \uparrow \rangle \right. \\ &\quad \left. - \frac{\beta e^{-2i\psi}}{\sqrt{6}} |(X-iY) \uparrow \rangle - \beta e^{-2i\psi} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \downarrow \rangle \right) \end{aligned} \quad (5.52)$$

et de même que précédemment, cet élément de matrice a pour composantes :

– selon x :

$$\langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(-\sqrt{1-\beta^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{-2i\psi} \right) \xi_x \quad (5.53)$$

– selon y :

$$\langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1-\beta^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{-2i\psi} \right) \xi_y \quad (5.54)$$

Ces éléments de matrice nous permettent de déterminer ceux des états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ de la boîte :

3. pour l'exciton $|\tilde{X}\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}}(|+\tilde{1}\rangle - e^{2i\theta} |-\tilde{1}\rangle)$:

– selon x :

$$\langle \tilde{X}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = e^{i\theta} \left(\sqrt{1-\beta^2} \cos \theta - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta) \right) \xi_x \quad (5.55)$$

– selon y :

$$\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y = e^{i\theta} \left(-\sqrt{1-\beta^2} \sin \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi - \theta) \right) \xi_y \quad (5.56)$$

4. pour l'exciton $|\tilde{Y}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+\tilde{1}\rangle + e^{2i\theta} |-\tilde{1}\rangle)$:

– selon x :

$$\langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x = e^{i\theta} \left(\sqrt{1-\beta^2} \sin \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi - \theta) \right) \xi_x \quad (5.57)$$

– selon y :

$$\langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y = e^{i\theta} \left(\sqrt{1-\beta^2} \cos \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta) \right) \xi_y \quad (5.58)$$

Nous retrouvons bien lorsque $\beta = 0$ les éléments de matrice (5.11) calculés pour les états X' et Y' . Nous constatons qu'en revanche lorsque $\beta \neq 0$, même en prenant $\theta = 0^\circ$, les éléments de matrice des deux états propres s'écrivent :

$$\begin{cases} \langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \left(\sqrt{1-\beta^2} - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi) \right) \xi_x + \left(\frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi) \right) \xi_y \\ \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle = \left(\frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi) \right) \xi_x + \left(\sqrt{1-\beta^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi) \right) \xi_y \end{cases} \quad (5.59)$$

L'émission des deux états propres n'est donc plus orientée selon les directions x et y , et en posant pour une excitation non résonnante $|\xi_x| = |\xi_y| = \xi$, nous voyons que son intensité est différente pour les deux états.

Intéressons nous justement à l'intensité lumineuse détectée, lors de l'émission de la boîte, en sortie d'un analyseur placé dans le plan (xy) et tournant d'un angle α par rapport à la direction $[110]$, comme représenté sur la figure (5.3).

Sous excitation non-résonnante

Lorsque le système est excité de manière non résonnante (au niveau de la couche de mouillage), en raison des nombreux processus de relaxation, la mémoire de la polarisation d'excitation est perdue et nous pouvons considérer les deux états propres peuplés de la même manière. Ainsi nous posons $|\xi_x| = |\xi_y| = |\xi_z| = \xi$. En outre dans ces conditions, l'émission de l'état $|\tilde{X}\rangle$ est incohérente avec celle de l'état $|\tilde{Y}\rangle$ et l'intensité lumineuse en sortie du polariseur est de fait la somme des intensités :

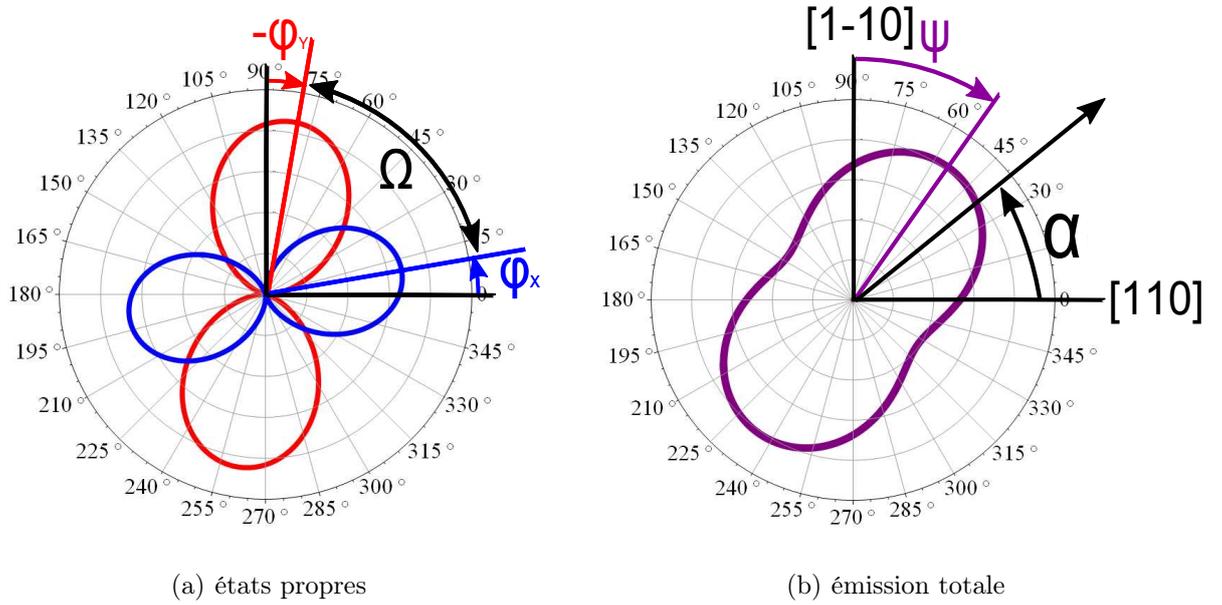


FIGURE 5.3 : Simulation pour $\theta = 0^\circ$, $\beta = 0.25$, $\psi = 35^\circ$, du diagramme polaire (a) des états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, ainsi que (b) celui de l'émission totale. Les angles $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ représentent l'inclinaison de la direction d'émission des états propres, respectivement par rapport aux directions $[110]$ et $[\bar{1}\bar{1}0]$ et Ω est l'angle entre ces deux directions. α est l'angle de la direction de l'analyseur par rapport à $[110]$.

– pour l'état $|\tilde{X}\rangle$:

$$\begin{aligned}
 I_{\tilde{X}}(\alpha) &= |\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x \cos \alpha + \langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y \sin \alpha|^2 \\
 &= [(\sqrt{1 - \beta^2} (\cos \theta \cos \alpha \xi_x - \sin \theta \sin \alpha \xi_y) \\
 &\quad + \frac{\beta}{\sqrt{3}} (-\cos(2\psi - \theta)) \cos \alpha \xi_x + \sin(2\psi - \theta) \sin \alpha \xi_y)]^2 \\
 &= \xi^2 [\sqrt{1 - \beta^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \quad (5.60)
 \end{aligned}$$

– pour l'état $|\tilde{Y}\rangle$:

$$\begin{aligned}
 I_{\tilde{Y}}(\alpha) &= |\langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x \cos \alpha + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y \sin \alpha|^2 \\
 &= [(\sqrt{1 - \beta^2} (\sin \theta \cos \alpha \xi_x + \cos \theta \sin \alpha \xi_y) \\
 &\quad + \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\sin(2\psi - \theta) \cos \alpha \xi_x + \cos(2\psi - \theta) \sin \alpha \xi_y)]^2 \\
 &= \xi^2 [\sqrt{1 - \beta^2} \sin(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \quad (5.61)
 \end{aligned}$$

En prenant la constante de normalisation $\xi = 1$, nous obtenons les intensités normalisée :

$$\begin{cases} I_{\tilde{X}}(\alpha) = [\sqrt{1 - \beta^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \\ I_{\tilde{Y}}(\alpha) = [\sqrt{1 - \beta^2} \sin(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \end{cases} \quad (5.62)$$

Sur la figure (5.3.a) sont simulés les diagrammes polaires des deux états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ pour un potentiel de confinement allongé selon $[1\bar{1}0]$ ($\theta = 0^\circ$) et des paramètres de mélange $\beta = 0.25$ et $\psi = 35^\circ$, choisis afin d'illustrer l'effet du mélange sur l'émission des deux états propres de la boîte. La première remarque s'imposant à nous, porte sur l'intensité d'émission des deux états excitoniques mélangés $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ qui n'est pas la même, bien que nous n'ayons pas considéré l'influence des forces d'oscillateur. D'autre part, nous remarquons que bien que le potentiel de confinement soit allongé selon un axe cristallographique ($\theta = 0$), les deux états excitoniques ne le sont pas, et surtout ils ne sont pas perpendiculaires entre eux. Chaque état est dévié, respectivement d'un angle $\phi_{\tilde{X}}$ par rapport à $[110]$ et d'un angle $\phi_{\tilde{Y}}$ par rapport à $[1\bar{1}0]$, et l'angle qu'ils forment entre eux prend la valeur $\Omega = \pi/2 - \phi_{\tilde{X}} - \phi_{\tilde{Y}} \neq \pi/2$. L'expression des angles $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ s'obtient en dérivant les intensités $I_{\tilde{X}}(\alpha)$ et $I_{\tilde{Y}}(\alpha)$ par rapport à α :

$$\begin{cases} \left(\frac{dI_{\tilde{X}}}{d\alpha} \right)_{\alpha=\phi_{\tilde{X}}} = 0 \\ \left(\frac{dI_{\tilde{Y}}}{d\alpha} \right)_{\alpha=\phi_{\tilde{Y}}} = 0 \end{cases} \quad (5.63)$$

D'après les expressions (5.62) :

$$\begin{cases} \frac{dI_{\tilde{X}}}{d\alpha}(\alpha) = 2 \left(\sqrt{1 - \beta^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta) \right) \times \\ \quad \left(-\sqrt{1 - \beta^2} \sin(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta) \right) \\ \frac{dI_{\tilde{Y}}}{d\alpha}(\alpha) = 2 \left(\sqrt{1 - \beta^2} \cos(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta) \right) \times \\ \quad \left(\sqrt{1 - \beta^2} \sin(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta) \right) \end{cases} \quad (5.64)$$

et nous trouvons :

$$\begin{cases} \tan(\phi_{\tilde{X}}) = \frac{-\sin \theta + \eta \sin(2\psi - \theta)}{\cos \theta - \eta \cos(2\psi - \theta)} \\ \tan(\phi_{\tilde{Y}}) = -\frac{\sin \theta + \eta \sin(2\psi - \theta)}{\cos \theta + \eta \cos(2\psi - \theta)} \end{cases} \quad (5.65)$$

où nous avons posé :

$$\eta = \frac{1}{\sqrt{3}} \frac{\beta}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad (5.66)$$

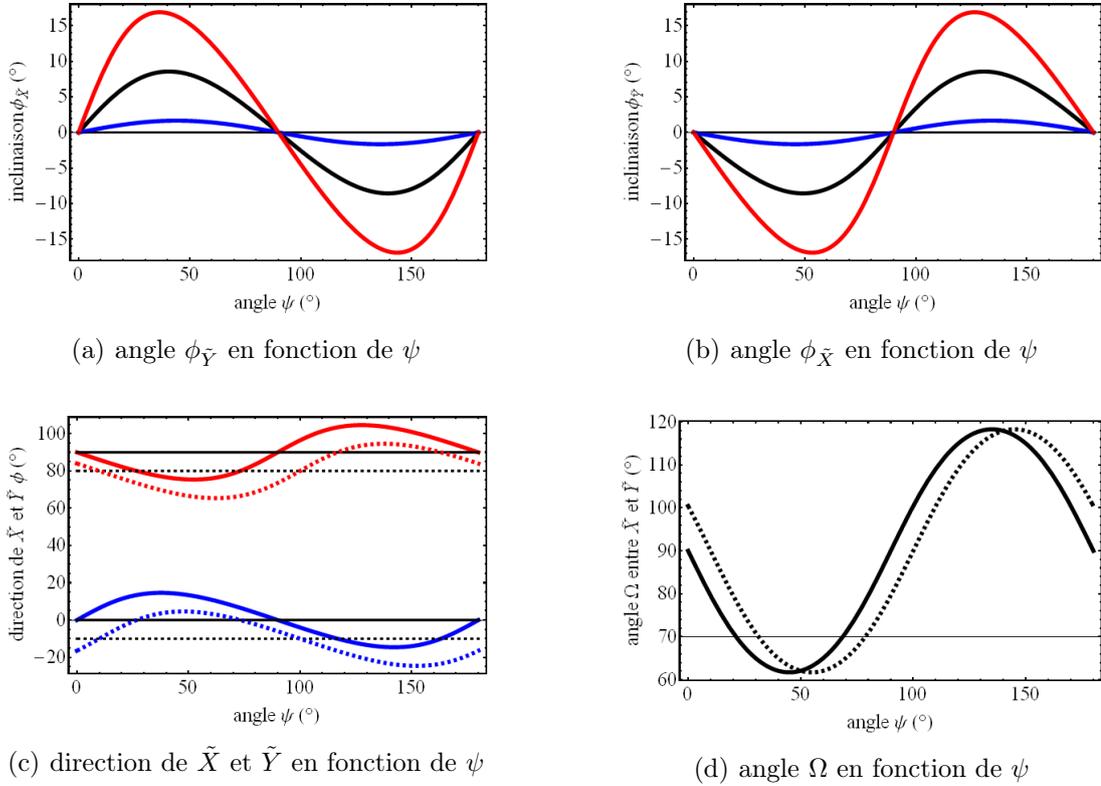


FIGURE 5.4 : Évolution de l'inclinaison des états propres par rapport aux directions cristallographiques en fonction des paramètres de mélange β et ψ . Les courbes (a) et (b) montrent l'évolution, pour $\theta = 0^\circ$ des angles d'inclinaison $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ en fonction de ψ pour $\beta = 0.05$ (bleu), $\beta = 0.25$ (noir) et $\beta = 0.45$ (rouge). Sur les figures (c) et (d) est représenté en traits pleins le cas $\theta = 0^\circ$ et en pointillés le cas $\theta = +10^\circ$. La figure (c) montre, en fonction de ψ , l'angle formé entre la direction $[110]$ et $|\tilde{X}\rangle$ en bleu et $|\tilde{Y}\rangle$ en rouge, pour $\beta = 0.4$. La courbe (d) finalement montre pour $\beta = 0.4$ l'évolution en fonction de ψ de l'angle Ω entre les deux états de structure fine de l'exciton.

Sur les figures (5.4.a) et (5.4.b) est ainsi représentée, pour $\beta = 0.05$, $\beta = 0.25$ et $\beta = 0.45$, l'évolution des angles $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ en fonction de ψ , dans le cas d'un potentiel orienté selon $[1\bar{1}0]$ ($\theta = 0^\circ$). Ainsi, nous voyons que $\phi_{\tilde{X}}$ augmente jusqu'à une valeur $\phi_{\tilde{X}}^{max}$ qui elle-même croît avec β . Par exemple ici, nous avons pour $\beta = 0.05$, $\phi_{\tilde{X}}^{max1} = 1.7^\circ$, pour $\beta = 0.25$, $\phi_{\tilde{X}}^{max2} = 8.6^\circ$ et pour $\beta = 0.45$, $\phi_{\tilde{X}}^{max3} = 16.9^\circ$. La valeur de $\phi_{\tilde{X}}$ diminue ensuite jusqu'à s'annuler pour $\psi = 90^\circ$, devient ensuite négative et décroît jusqu'à $-\phi_{\tilde{X}}^{max}$ avant d'augmenter pour s'annuler à nouveau pour $\psi = 180^\circ$.

Nous remarquons par ailleurs que la valeur de ψ pour laquelle l'angle $\phi_{\tilde{X}}$ atteint ses valeurs extrêmes $\phi_{\tilde{X}}^{max}$ et $-\phi_{\tilde{X}}^{max}$ dépend lui aussi de β . Ainsi, pour $\beta = 0.05$, l'angle $\phi_{\tilde{X}}^{max1}$ est atteint pour $\psi = 44^\circ$ et l'angle $-\phi_{\tilde{X}}^{max1}$ pour $\psi = 136^\circ$, tandis que pour $\beta = 0.25$, l'angle

$\phi_{\tilde{X}}^{max2}$ est atteint pour $\psi = 41^\circ$ et l'angle $-\phi_{\tilde{X}}^{max2}$ pour $\psi = 139^\circ$, et pour $\beta = 0.45$, l'angle $\phi_{\tilde{X}}^{max3}$ est atteint pour $\psi = 37^\circ$ et l'angle $-\phi_{\tilde{X}}^{max3}$ pour $\psi = 143^\circ$.

L'angle $\phi_{\tilde{Y}}$ a lui l'évolution inverse et diminue jusqu'à atteindre $-\phi_{\tilde{Y}}^{max1} = -1.7^\circ$ pour $\psi = 46^\circ$, lorsque $\beta = 0.05$, $-\phi_{\tilde{Y}}^{max2} = -8.6^\circ$ pour $\psi = 49^\circ$, lorsque $\beta = 0.25$ et $-\phi_{\tilde{Y}}^{max3} = -16.9^\circ$ pour $\psi = 53^\circ$, lorsque $\beta = 0.45$. La valeur de $\phi_{\tilde{Y}}$ augmente alors jusqu'à s'annuler pour $\psi = 90^\circ$ (les deux états propres sont alors à nouveau perpendiculaires) puis atteindre $\phi_{\tilde{Y}}^{max}$, pour finalement diminuer et s'annuler pour $\psi = 180^\circ$.

Sur les figures (5.4.c) et (5.4.d) sont comparés les cas de figure $\theta = 0^\circ$ en traits pleins et $\theta = +10^\circ$ en pointillés. Nous remarquons ainsi que le comportement est le même mais décalé, le seul paramètre important étant en réalité l'angle que forme la direction principale de polarisation avec celle d'élongation du potentiel de confinement, c'est à dire l'angle $(\psi - \theta)$. Cela est particulièrement visible sur la figure (5.4.d) où est représentée l'évolution de l'angle Ω entre la direction de $|\tilde{X}\rangle$ et celle de $|\tilde{Y}\rangle$, en fonction de ψ , pour $\beta = 0.4$. En effet, sur cette figure la courbe obtenue pour $\theta = +10^\circ$ est la même que celle obtenue pour $\theta = 0^\circ$, mais décalée de $+10^\circ$ par rapport à celle-ci. La figure (5.4.c) montre elle l'évolution de l'angle que font les directions de $|\tilde{X}\rangle$ (en bleu) et $|\tilde{Y}\rangle$ (en rouge) par rapport à l'axe [110], en fonction de ψ , pour $\beta = 0.4$. Nous constatons que les courbes obtenues pour $\theta = +10^\circ$ sont les mêmes que celles obtenues pour $\theta = 0^\circ$, mais décalées de $+10^\circ$ sur l'axe des abscisses (et de -10° sur l'axe des ordonnées).

L'intensité totale normalisée est donnée par la somme des intensités :

$$I_{nr}(\alpha) = I_{\tilde{X}}(\alpha) + I_{\tilde{Y}}(\alpha) \quad (5.67)$$

soit :

$$I_{nr}(\alpha) = 1 - \frac{2}{3}\beta^2 - 2\beta\sqrt{\frac{1-\beta^2}{3}}\cos(2(\alpha + \psi)) \quad (5.68)$$

Cette intensité qui dépend donc uniquement des paramètres de mélange β et ψ est représentée en violet sur la figure (5.3.b).

Le premier paramètre, β , détermine le contraste $C = (I_{Max} - I_{min})/(I_{Max} + I_{min})$ du diagramme d'émission totale :

$$C(\beta) = \frac{4\beta\sqrt{\frac{1-\beta^2}{3}}}{2 - 4\frac{\beta^2}{3}} = \frac{2\beta\sqrt{3(1-\beta^2)}}{3 - 2\beta^2} \quad (5.69)$$

ou en utilisant la notation (5.66) :

$$C(\eta) = \frac{2\eta}{1 + \eta^2} \quad (5.70)$$

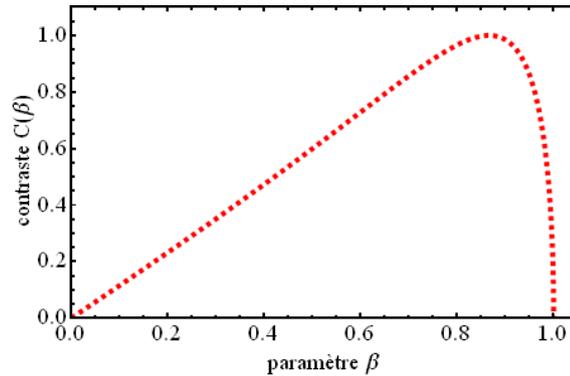


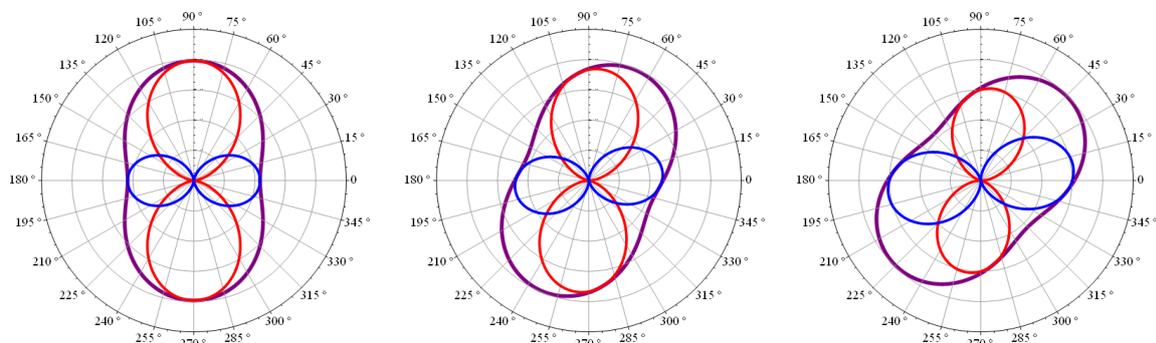
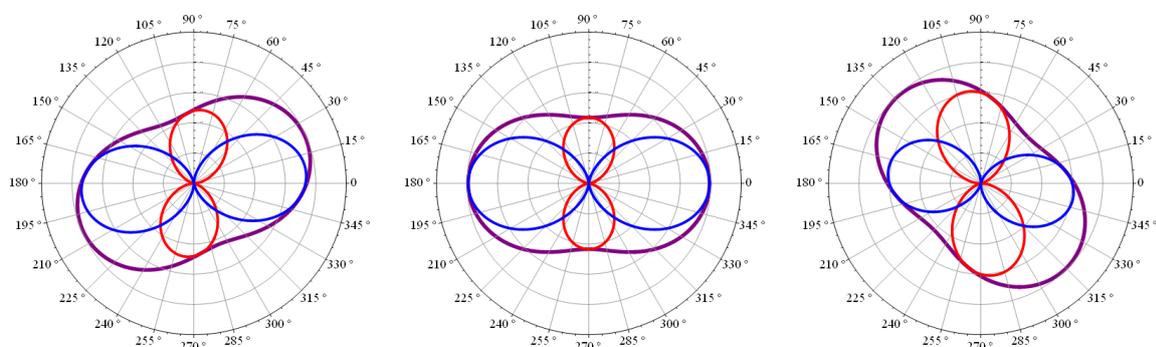
FIGURE 5.5 : *Contraste de polarisation en fonction du paramètre de mélange β .*

L'évolution du contraste en fonction du paramètre de mélange β est représenté en rouge sur la figure (5.5). Nous voyons que celui-ci croît linéairement jusqu'à 1 pour $\beta = \sqrt{3}/4$ puis décroît brutalement. En effet, pour $\beta = 0$ et $\beta = 1$, l'état excitonique est un état pur, respectivement formés de trous lourds et de trous légers. Dans ce cas, l'intensité d'émission des deux états propres est la même et le diagramme polaire de l'émission totale est un cercle (le contraste est donc nul). Entre ces deux valeurs, comme exprimé dans (5.62), le terme en $\beta/\sqrt{3}$ se soustrait à l'intensité de l'état $|\tilde{X}\rangle$ non mélangé et s'ajoute à l'intensité de l'état $|\tilde{Y}\rangle$ non mélangé. L'intensité d'émission des deux états est ainsi différente et la polarisation de l'intensité totale devient alors elliptique. Remarquons que le maximum du contraste ne se produit pas pour $\beta = 0.5$ car dans l'expression des états lourds $|\frac{3}{2}; \pm\frac{3}{2}\rangle_v$ et légers $|\frac{3}{2}; \pm\frac{1}{2}\rangle_v$, le terme $|X \pm iY\rangle$ n'a pas la même constante de normalisation, celle-ci valant $1/\sqrt{2}$ pour les trous lourds et $1/\sqrt{6}$ pour les trous légers.

Le second paramètre, ψ , définit l'angle que forme la direction principale de polarisation avec $[1\bar{1}0]$, comme représenté sur la figure (5.3.b). Le diagramme polaire de l'intensité totale d'émission d'une boîte permet donc à lui seul de déterminer les paramètres de mélange, mais pas d'accéder aux directions $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ des états excitoniques, ni à l'orientation θ du potentiel de confinement.

Sur la figure (5.6) sont simulés les diagrammes polaires des états propres de structure fine, $|\tilde{X}\rangle$ en bleu et $|\tilde{Y}\rangle$ en rouge, dans le cas d'un potentiel de confinement allongé selon les axes cristallographiques et dans celui d'une anisotropie selon une direction définie par l'angle $\theta = 10^\circ$, pour un même paramètre de mélange $\beta = 0.25$ et différentes valeurs ψ . En violet sont tracés les diagrammes polaires de l'émission totale. Le cas $\beta = 0$ (pas de mélange trous lourds - trous légers) a lui déjà été représenté sur la figure (5.1) où les intensités $I_{\tilde{X}}(\alpha)$ et $I_{\tilde{Y}}(\alpha)$ étaient égales et les axes propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ perpendiculaires entre eux et

$$\theta = 0^\circ, \beta = 0.25$$

(a) $\psi = 0^\circ$ (b) $\psi = +22.5^\circ$ (c) $\psi = +45^\circ$ (d) $\psi = +67.5^\circ$ (e) $\psi = \pm 90^\circ$ (f) $\psi = -45^\circ$

$$\theta = +10^\circ, \beta = 0.25$$

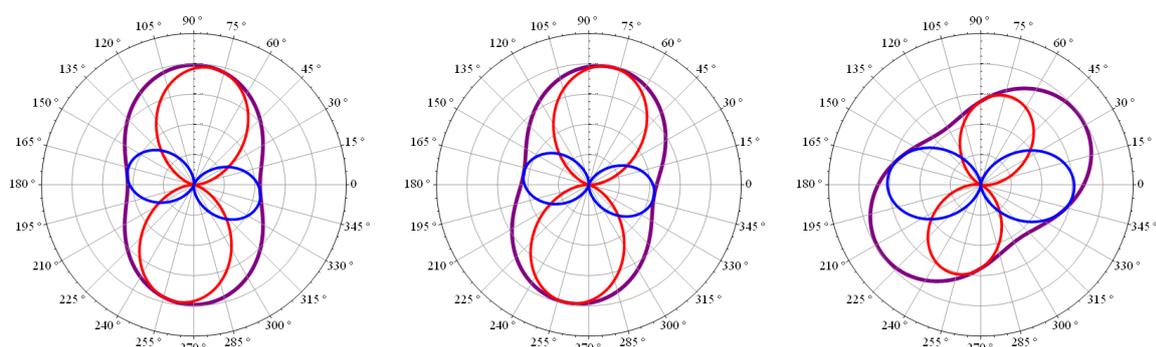
(g) $\psi = 0^\circ$ (h) $\psi = +10^\circ$ (i) $\psi = +55^\circ$

FIGURE 5.6 : Simulation des diagrammes polaires, en rouge de l'état $|\tilde{Y}\rangle$, en bleu de l'état $|\tilde{X}\rangle$ et en violet de l'intensité totale, pour $\beta = 0.25$. Les six premiers correspondent au cas $\theta = 0^\circ$ (potentiel de confinement allongé selon $[1\bar{1}0]$), les trois derniers au cas $\theta = +10^\circ$. Dans chaque cas, nous faisons varier l'angle ψ pour voir les conséquences sur $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$.

dirigés respectivement perpendiculairement et parallèlement à la direction d'élongation du potentiel de confinement.

En comparant les figures (5.6.a) et (5.6.g), nous constatons qu'à un même diagramme polaire de l'intensité totale peuvent correspondre plusieurs structures fines différentes en fonction de la forme du potentiel de confinement. Nous comprenons ainsi pourquoi, à partir de l'intensité totale, nous ne pouvons déterminer l'émission des deux états propres.

Lorsque $\beta \neq 0$, le rapport des intensités $I_{\tilde{X}}(\alpha)$ et $I_{\tilde{Y}}(\alpha)$, tout comme l'angle que font les axes propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ entre eux et par rapport aux axes cristallographiques, dépendent de l'angle $(\psi - \theta)$ entre la direction de l'intensité totale d'émission et la direction d'élongation du potentiel de confinement. Si nous regardons par exemple les figures (5.6.a) et (5.6.h), nous voyons que pour $(\psi - \theta) = 0^\circ$, l'émission de l'état $|\tilde{Y}\rangle$ est favorisée et parallèle à la direction d'élongation du confinement, et les deux états propres sont perpendiculaires entre eux. De même, la figure (5.6.e) montre que lorsque $(\psi - \theta) = 90^\circ$, l'émission de l'état $|\tilde{X}\rangle$ est favorisée et perpendiculaire à la direction d'élongation du confinement, les deux états propres étant perpendiculaires entre eux.

À mesure que l'angle $(\psi - \theta)$ augmente, l'intensité d'émission des deux états propres, tout comme leurs direction évolue. Ainsi, alors que pour $(\psi - \theta) = 0^\circ$ (figures (5.6.a) et (5.6.h)) nous avons $I_{\tilde{X}}/I_{\tilde{Y}} = (\sqrt{3(1 - \beta^2)} - \beta)/(\sqrt{3(1 - \beta^2)} + \beta) \approx 0.74$, nous avons lorsque $(\psi - \theta) = 22.5^\circ$ (figure (5.6.b)) $I_{\tilde{X}}/I_{\tilde{Y}} = (\sqrt{6(1 - \beta^2)} - \beta)/(\sqrt{6(1 - \beta^2)} + \beta) \approx 0.81$ et lorsque $(\psi - \theta) = 45^\circ$, comme illustré dans les figures (5.6.c) et (5.6.i), les deux intensités sont égales. Puis pour $(\psi - \theta) = 67.5^\circ$ (figure (5.6.d)), nous obtenons $I_{\tilde{X}}/I_{\tilde{Y}} = (\sqrt{6(1 - \beta^2)} + \beta)/(\sqrt{6(1 - \beta^2)} - \beta) \approx 1.23$ et pour $(\psi - \theta) = 90^\circ$ (figure (5.6.e)), $I_{\tilde{X}}/I_{\tilde{Y}} = (\sqrt{3(1 - \beta^2)} + \beta)/(\sqrt{3(1 - \beta^2)} - \beta) \approx 1.35$. Comme le montre la figure (5.6.f), le comportement est le même lorsque $(\psi - \theta)$ prend des valeurs négatives.

Sous excitation résonnante

La largeur des impulsions laser que nous utilisons étant voisine de 1 meV , celles-ci sont bien plus larges que l'écart en énergie entre les deux états de structure fine de l'exciton neutre, qui atteint au maximum 0.2 meV . Pour cette raison, lorsque le laser d'excitation est résonnant avec l'une des transitions de structure fine, il l'est également avec l'autre. Les deux états propres sont ainsi excités et leur émission est cohérente. Cela nous permet de déterminer l'expression de l'intensité émise par la boîte sous excitation résonnante avec

sa transition fondamentale :

$$\begin{aligned}
I_r(\alpha) &= |(\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x) \cos \alpha + (\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y) \sin \alpha|^2 \\
&= \left\{ (\cos \alpha \xi_x + \sin \alpha \xi_y) (\sqrt{1 - \beta^2} \cos \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi - \theta)) \right. \\
&\quad \left. + (\cos \alpha \xi_x - \sin \alpha \xi_y) (\sqrt{1 - \beta^2} \sin \theta - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta)) \right\}^2 \quad (5.71)
\end{aligned}$$

Les forces d'oscillateur $\mathcal{F}_{\tilde{X}}$ et $\mathcal{F}_{\tilde{Y}}$, respectivement des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, s'écrivant sous la forme :

$$\begin{cases} \mathcal{F}_{\tilde{X}} = \frac{-\sin \phi_{\tilde{X}} \xi_x + \cos \phi_{\tilde{X}} \xi_y}{\cos \phi_{\tilde{X}} \cos \phi_{\tilde{Y}} + \sin \phi_{\tilde{X}} \sin \phi_{\tilde{Y}}} \\ \mathcal{F}_{\tilde{Y}} = \frac{\cos \phi_{\tilde{Y}} \xi_x + \sin \phi_{\tilde{Y}} \xi_y}{\cos \phi_{\tilde{X}} \cos \phi_{\tilde{Y}} + \sin \phi_{\tilde{X}} \sin \phi_{\tilde{Y}}} \end{cases} \quad (5.72)$$

en posant $R = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}}$ le rapport des forces d'oscillateur, nous trouvons donc :

$$\begin{aligned}
I_r(\alpha) &= K \left\{ \left[(\cos(\alpha - \phi_{\tilde{X}}) + R \sin(\alpha - \phi_{\tilde{Y}})) (\sqrt{1 - \beta^2} \cos \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi - \theta)) \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + \left[(\cos(\alpha - \phi_{\tilde{X}}) - R \sin(\alpha - \phi_{\tilde{Y}})) (\sqrt{1 - \beta^2} \sin \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta)) \right] \right\}^2 \quad (5.73)
\end{aligned}$$

où K est une constante de normalisation.

Nous n'avons pour l'instant pas pris en considération la direction de polarisation du laser d'excitation, cependant dans nos expériences celui-ci étant polarisé verticalement (selon y), nous devons en réalité écrire :

$$\begin{aligned}
I_r(\alpha) &= \left| (\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x \sin \phi_{\tilde{X}} + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x \cos \phi_{\tilde{Y}}) \cos \alpha \right. \\
&\quad \left. + (\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y \sin \phi_{\tilde{X}} + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y \cos \phi_{\tilde{Y}}) \sin \alpha \right|^2 \quad (5.74)
\end{aligned}$$

ce qui nous donne l'expression de l'intensité normalisée de l'émission lumineuse lors de la recombinaison radiative de l'exciton neutre, sous excitation résonante :

$$\begin{aligned}
I_r(\alpha) &= \left\{ \left[\sqrt{1 - \beta^2} (\cos \theta \sin \phi_{\tilde{X}} + \sin \theta \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right. \right. \\
&\quad \left. \left. - \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\cos(2\psi - \theta) \sin \phi_{\tilde{X}} - \sin(2\psi - \theta) \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right] \right. \\
&\quad \left. (\cos \phi_{\tilde{X}} - R \sin \phi_{\tilde{Y}}) \cos \alpha \right. \\
&\quad \left. + \left[\sqrt{1 - \beta^2} (-\sin \theta \sin \phi_{\tilde{X}} + \cos \theta \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\sin(2\psi - \theta) \sin \phi_{\tilde{X}} + \cos(2\psi - \theta) \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right] \right. \\
&\quad \left. (\sin \phi_{\tilde{X}} + R \cos \phi_{\tilde{Y}}) \sin \alpha \right\}^2 \quad (5.75)
\end{aligned}$$

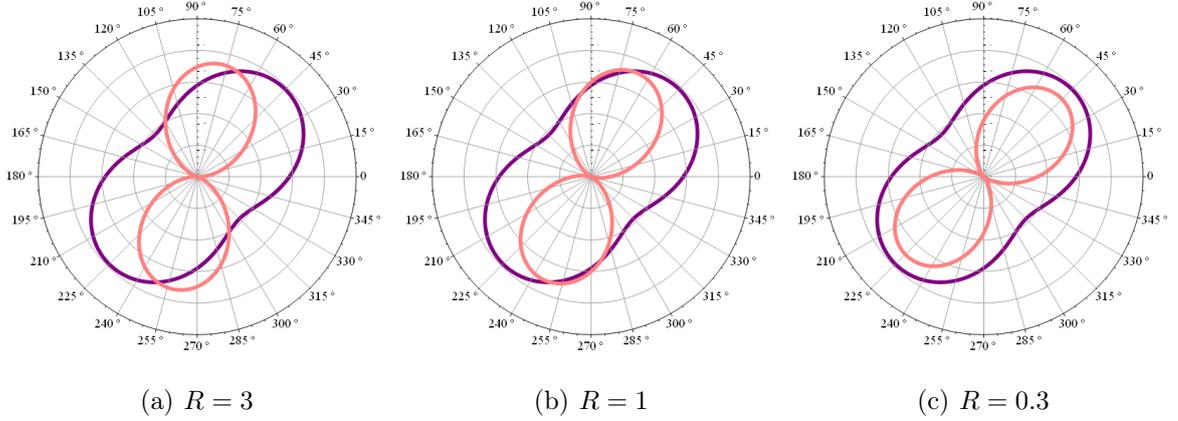


FIGURE 5.7 : Diagrammes polaires simulés de l'intensité totale d'émission, en violet sous excitation non résonnante, en rose sous excitation résonnante, pour les mêmes paramètres $\beta = 0.3$, $\psi = 45^\circ$, $\theta = 0^\circ$, pour un rapport des forces d'oscillateur de (a) $R = 3$, (b) $R = 1$ et (c) $R = 0.3$.

Les angles $\phi_{\tilde{X}}$ et $\phi_{\tilde{Y}}$ peuvent être remplacés par les expressions (5.65). La polarisation de l'émission totale sous excitation résonnante est donc linéaire et dépend d'une part des paramètres de mélange β et ψ et de la direction θ d'élongation du potentiel de confinement, et d'autre part du rapport R des forces d'oscillateur des deux états excitoniques. Les trois premiers paramètres pouvant être déterminés par l'étude de l'émission des états propres sous excitation non résonnante, la direction de l'axe principal de polarisation de la luminescence sous excitation résonnante permet alors d'obtenir le rapport R des forces d'oscillateur, comme nous le verrons dans la section 5.3.3. Sur la figure (5.7) sont ainsi simulés les diagrammes polaires de la luminescence d'une boîte quantique sous excitation résonnante, pour les mêmes paramètres $\beta = 0.3$ et $\psi = 45^\circ$ et $\theta = 0^\circ$, dans le cas d'un rapport des forces d'oscillateur $R = 3$ ($\mathcal{F}_{\tilde{Y}} > \mathcal{F}_{\tilde{X}}$), $R = 1$ ($\mathcal{F}_{\tilde{Y}} = \mathcal{F}_{\tilde{X}}$) et $R = 0.3$ ($\mathcal{F}_{\tilde{Y}} < \mathcal{F}_{\tilde{X}}$).

5.2.3 Effets du mélange dans le plan perpendiculaire (yz)

5.2.3.a Les états propres

Comme le hamiltonien dipolaire peut uniquement coupler entre eux des états de même spin, l'émission des états mélangés (5.44) devrait uniquement s'effectuer dans le plan (xy), puisque les états $|Z\rangle$ sont de spin opposé aux états $|S\rangle$. L'observation d'une composante de la luminescence dans la direction de croissance z signifie donc qu'il existe un mélange d'états de trous lourds et légers de même spin et il est alors nécessaire de considérer les termes σ du hamiltonien (5.35). Les états mélangés $|\tilde{\downarrow}_v\rangle$ et $|\tilde{\uparrow}_v\rangle$ peuvent alors être

définis tels que :

$$\begin{cases} \langle \chi_c | (|\tilde{\downarrow}_v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle) \rangle = \left(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \left| \frac{3}{2}; -\frac{3}{2} \right\rangle_v + \beta e^{2i\psi} \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v + \gamma e^{2i\psi\gamma} \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v \right) \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \\ \langle \chi_c | (|\tilde{\uparrow}_v\rangle \otimes |\chi_v^{hh}\rangle) \rangle = \left(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \left| \frac{3}{2}; +\frac{3}{2} \right\rangle_v + \beta e^{-2i\psi} \left| \frac{3}{2}; -\frac{1}{2} \right\rangle_v + \gamma e^{-2i\psi\gamma} \left| \frac{3}{2}; +\frac{1}{2} \right\rangle_v \right) \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \end{cases} \quad (5.76)$$

où tout comme β , le paramètre γ (relié à σ) rend compte de la proportion de trous légers dans le mélange, mais aussi du recouvrement des fonctions enveloppes des trous légers avec celle de l'électron de conduction et l'angle ψ_γ représente la phase du mélange supplémentaire.

Les éléments de matrice entrant en jeu lors de la recombinaison radiative des excitons brillants sont alors :

1. pour l'état $|+\tilde{1}\rangle$:

$$\begin{aligned} \langle +\tilde{1} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle &= \left\langle \frac{1}{2}; -\frac{1}{2} \right|_c \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | \tilde{\downarrow}_v \rangle \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \\ &= \alpha_{env} (-i \langle S \downarrow |) \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} \left(-\sqrt{\frac{1 - \beta^2}{2}} |(X - iY) \downarrow \rangle \right. \\ &\quad \left. + \frac{\beta e^{2i\psi}}{\sqrt{6}} |(X + iY) \downarrow \rangle - \beta e^{2i\psi} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \uparrow \rangle \right. \\ &\quad \left. - \frac{\gamma e^{2i\psi\gamma}}{\sqrt{6}} |(X - iY) \uparrow \rangle - \gamma e^{2i\psi\gamma} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \downarrow \rangle \right) \end{aligned} \quad (5.77)$$

nous trouvons donc :

– une composante selon x :

$$\langle +\tilde{1} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_x = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} - \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{2i\psi} \right) \xi_x \quad (5.78)$$

– une composante selon y :

$$\langle +\tilde{1} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{2i\psi} \right) \xi_y \quad (5.79)$$

– une composante selon z :

$$\langle +\tilde{1} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_z = i \sqrt{\frac{2}{3}} \left(\gamma e^{2i\psi\gamma} \right) \xi_z \quad (5.80)$$

2. pour l'état $|\tilde{-1}\rangle$:

$$\begin{aligned}
\langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle &= \langle \frac{1}{2}; +\frac{1}{2} | \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} | \tilde{\uparrow}_v \rangle \langle \chi_c | \chi_v^{hh} \rangle \\
&= \alpha_{env} (-i \langle S \downarrow |) \boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E} \left(-\sqrt{\frac{1-\beta^2}{2}} |(X-iY) \downarrow \rangle \right. \\
&\quad - \frac{\beta e^{-2i\psi}}{\sqrt{6}} |(X-iY) \uparrow \rangle - \beta e^{-2i\psi} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \downarrow \rangle \\
&\quad \left. + \frac{\gamma e^{-2i\psi_\gamma}}{\sqrt{6}} |(X+iY) \downarrow \rangle - \gamma e^{-2i\psi_\gamma} \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \uparrow \rangle \right) \quad (5.81)
\end{aligned}$$

et de même que précédemment, nous avons :

– une composante selon x :

$$\langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = \frac{i}{\sqrt{2}} \left(-\sqrt{1-\beta^2-\gamma^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{-2i\psi} \right) \xi_x \quad (5.82)$$

– une composante selon y :

$$\langle -\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_y = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{1-\beta^2-\gamma^2} + \frac{\beta}{\sqrt{3}} e^{-2i\psi} \right) \xi_y \quad (5.83)$$

– une composante selon z :

$$\langle +\tilde{1}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_z = i\sqrt{\frac{2}{3}} \left(\gamma e^{-2i\psi_\gamma} \right) \xi_z \quad (5.84)$$

3. pour l'exciton $|\tilde{X}\rangle$ de la boîte :

– composante selon x :

$$\langle \tilde{X}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = e^{i\theta} \left(\sqrt{1-\beta^2-\gamma^2} \cos\theta - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi-\theta) \right) \xi_x \quad (5.85)$$

– composante selon y :

$$\langle \tilde{X}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_y = e^{i\theta} \left(-\sqrt{1-\beta^2-\gamma^2} \sin\theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi-\theta) \right) \xi_y \quad (5.86)$$

– composante selon z :

$$\langle \tilde{X}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_z = e^{i\theta} \frac{2i\gamma}{\sqrt{3}} \sin(2\psi_\gamma - \theta) \xi_z \quad (5.87)$$

4. pour l'exciton $|\tilde{Y}\rangle$ de la boîte :

– composante selon x :

$$\langle \tilde{Y}|\boldsymbol{\mu}\cdot\mathbf{E}|0\rangle_x = e^{i\theta} \left(\sqrt{1-\beta^2-\gamma^2} \sin\theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi-\theta) \right) \xi_x \quad (5.88)$$

– composante selon y :

$$\langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_y = e^{i\theta} \left(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \cos \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta) \right) \xi_y \quad (5.89)$$

– composante selon z :

$$\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E} | 0 \rangle_z = e^{i\theta} \frac{2i\gamma}{\sqrt{3}} \cos(2\psi_\gamma - \theta) \xi_z \quad (5.90)$$

À partir de ces éléments de matrice, nous pouvons alors déterminer l'intensité d'émission dans le plan des boîtes (xy), mais aussi dans le plan perpendiculaire (yz).

5.2.3.b Intensité d'émission

Dans le plan (xy)

Lorsque nous plaçons, comme précédemment, l'analyseur de détection dans le plan (xy), nous retrouvons l'expression de l'intensité normalisée, en fonction de l'angle α :

– hors résonance

$$\begin{cases} I_{\tilde{X}}(\alpha) = [\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \\ I_{\tilde{Y}}(\alpha) = [\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \sin(\alpha + \theta) + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\psi - \theta)]^2 \end{cases} \quad (5.91)$$

soit :

$$I_{nr}(\alpha) = 1 - \frac{2}{3}\beta^2 - \gamma^2 - 2\beta\sqrt{\frac{1 - \beta^2 - \gamma^2}{3}} \cos(2(\alpha + \psi)) \quad (5.92)$$

– à la résonance

$$\begin{aligned} I_r(\alpha) = & \left\{ \left[\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} (\cos \theta \sin \phi_{\tilde{X}} + \sin \theta \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right. \right. \\ & \left. \left. - \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\cos(\theta - 2\psi) \sin \phi_{\tilde{X}} + \sin(\theta - 2\psi) \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right] \right. \\ & \left. (\cos \phi_{\tilde{X}} - R \sin \phi_{\tilde{Y}}) \cos \alpha \right. \\ & + \left[\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} (-\sin \theta \sin \phi_{\tilde{X}} + \cos \theta \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right. \\ & \left. - \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\sin(\theta - 2\psi) \sin \phi_{\tilde{X}} - \cos(\theta - 2\psi) \cos \phi_{\tilde{Y}}) \right] \\ & \left. (\sin \phi_{\tilde{X}} + R \cos \phi_{\tilde{Y}}) \sin \alpha \right\}^2 \quad (5.93) \end{aligned}$$

La luminescence dans le plan (xy) dépend donc maintenant d'un paramètre γ supplémentaire. Celui-ci n'influe en rien sur la direction ψ du diagramme polaire de l'émission totale, mais nous sommes en droit de nous interroger sur la modification du contraste qu'il engendre. En effet, nous avons maintenant :

$$C(\beta, \gamma) = \frac{2\beta\sqrt{3(1 - \beta^2 - \gamma^2)}}{3 - 2\beta^2 - 3\gamma^2} \quad (5.94)$$

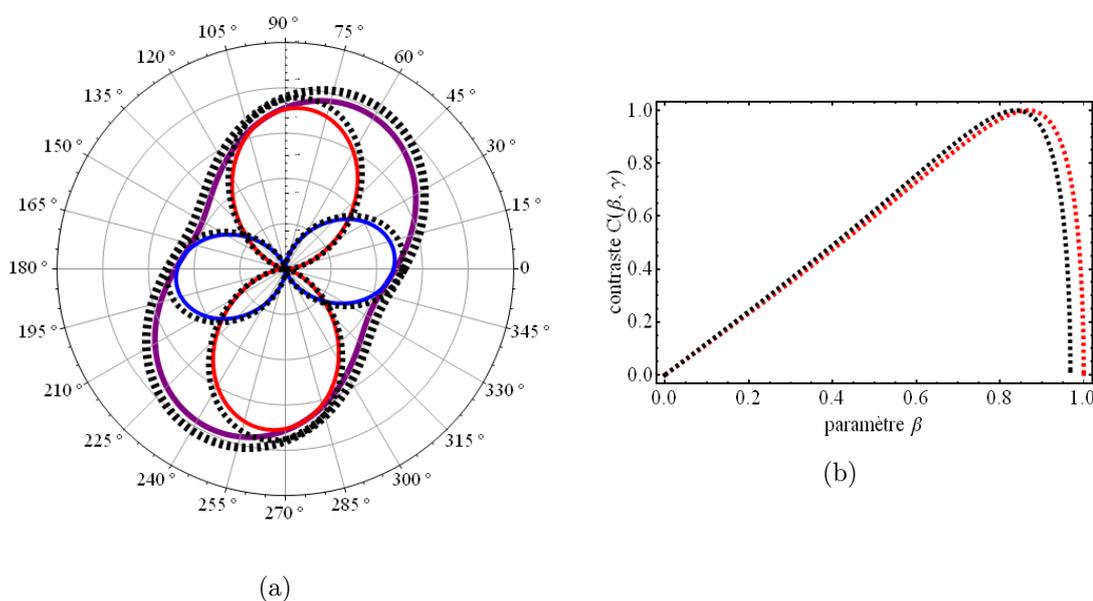


FIGURE 5.8 : (a) Simulation des diagrammes polaires dans le plan (xy) , sous excitation non résonnante, pour $\beta = 0.25$, $\psi = 25^\circ$ et $\gamma = 0$ (rouge, bleu et violet) et pour $\gamma = 0.3$ (pointillés noirs). (b) Contraste de l'intensité totale $C(\beta, \gamma)$ en fonction du paramètre β , en rouge pour $\gamma = 0$ et en noir pour $\gamma = 0.3$.

Cependant, l'influence du paramètre γ sur la luminescence mesurée dans le plan des boîtes est faible. En effet, sur la figure (5.8.a) sont représentés pour les mêmes paramètres $\psi = 25^\circ$ et $\beta = 0.25$, en traits pleins les diagrammes polaires obtenus pour $\gamma = 0$ et en pointillés ceux obtenus pour $\gamma = 0.3$. Nous voyons que la présence du paramètre γ ne change en rien la direction des axes propres et n'influe presque pas sur leur intensité relative. Sur la figure (5.8.b) est tracée l'évolution du contraste en fonction du paramètre β , en rouge pour $\gamma = 0$ et en noir pour $\gamma = 0.3$, qui est la valeur maximale observée au cours de nos expériences. Nous voyons que les deux courbes sont très proches l'une de l'autre, en particulier dans le domaine qui nous intéresse, à savoir pour $\beta < 0.4$ qui est la valeur maximale trouvée pour ce paramètre. Nous voyons ainsi qu'il est possible, à partir du contraste de la luminescence dans le plan (xy) de déterminer la valeur du paramètre β , en faisant abstraction de la présence du paramètre de mélange supplémentaire γ .

Dans le plan (yz)

Si, comme le permet la configuration de notre montage, nous plaçons maintenant un analyseur dans le plan (yz) , en le faisant tourner d'un angle α par rapport à l'axe z , nous obtenons :

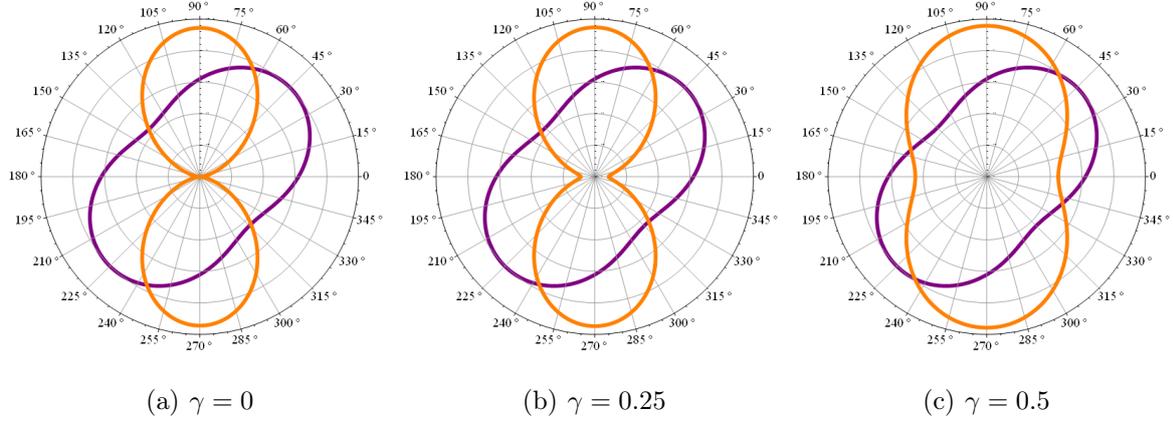


FIGURE 5.9 : Simulation des diagrammes polaires de l'intensité totale, en violet dans le plan (xy) et en orange dans le plan (yz) , pour les mêmes paramètres $\psi = 45^\circ$, $\theta = 0^\circ$ et $\beta = 0.25$, avec (a) $\gamma = 0$, (b) $\gamma = 0.25$ et (c) $\gamma = 0.5$.

– pour l'état $|\tilde{X}\rangle$:

$$\begin{aligned}
 I'_{\tilde{X}}(\alpha) &= |\langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_L | 0 \rangle_y \sin \alpha + \langle \tilde{X} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_L | 0 \rangle_z \cos \alpha|^2 \\
 &= |(-\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \sin \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(2\psi - \theta)) \sin \alpha \xi_y \\
 &\quad + \frac{2i\gamma}{\sqrt{3}} \sin(2\psi_\gamma - \theta) \cos \alpha \xi_z|^2
 \end{aligned} \tag{5.95}$$

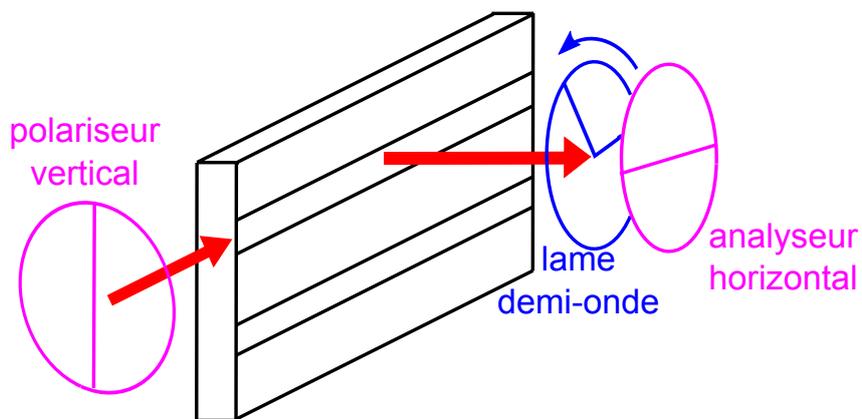
– pour l'état $|\tilde{Y}\rangle$:

$$\begin{aligned}
 I'_{\tilde{Y}}(\alpha) &= |\langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_L | 0 \rangle_y \sin \alpha + \langle \tilde{Y} | \boldsymbol{\mu} \cdot \mathbf{E}_L | 0 \rangle_z \cos \alpha|^2 \\
 &= |(\sqrt{1 - \beta^2 - \gamma^2} \cos \theta + \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(2\psi - \theta)) \sin \alpha \xi_y \\
 &\quad + \frac{2i\gamma}{\sqrt{3}} \cos(2\psi_\gamma - \theta) \cos \alpha \xi_z|^2
 \end{aligned} \tag{5.96}$$

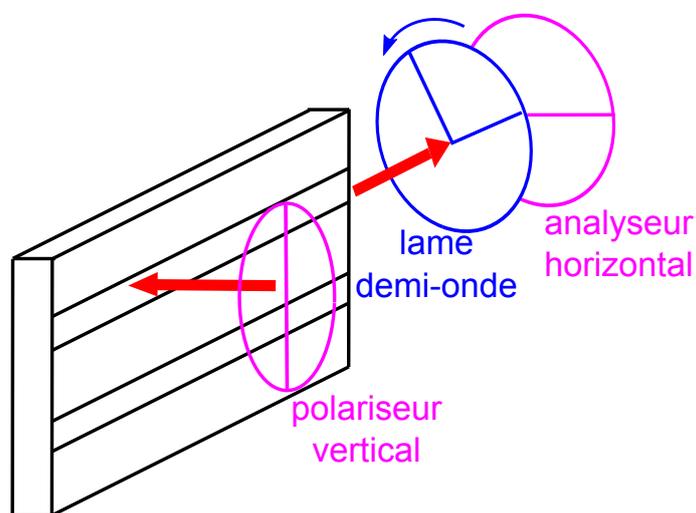
En prenant la constante de normalisation $|\xi_x| = |\xi_y| = |\xi_z| = \xi = 1$, nous obtenons l'intensité totale normalisée, dans le plan (yz) :

$$I'_{nr}(\alpha) = \left[1 - \frac{2\beta^2}{3} + 2\beta \sqrt{\frac{1 - \beta^2 - \gamma^2}{3}} \cos(2\psi) - \gamma^2 \right] \sin^2 \alpha + \frac{4}{3} \gamma^2 \cos^2 \alpha \tag{5.97}$$

Pour $\gamma = 0$, la luminescence est donc polarisée linéairement selon l'axe y , mais dès que $\gamma \neq 0$, il apparaît une composante selon l'axe de croissance z . Sur la figure (5.9) est représentée pour les mêmes paramètres $\psi = 45^\circ$, $\theta = 0^\circ$ et $\beta = 0.25$, le diagramme polaire de la luminescence totale, dans le plan (xy) (en violet) et dans le plan (yz) (en orange), pour $\gamma = 0$, $\gamma = 0.25$ et $\gamma = 0.5$.



(a) excitation guidée, détection perpendiculaire



(b) excitation perpendiculaire, détection par la face clivée en sortie du guide

FIGURE 5.10 : Schéma des deux configurations expérimentales utilisées pour les études en polarisation. La première est utilisée pour étudier la polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, la seconde dans le plan perpendiculaire, contenant l'axe de croissance.

5.3 Résultats expérimentaux

5.3.1 Principe des mesures en polarisation

Pour accéder aux différents paramètres de mélange des boîtes étudiées, il nous faut utiliser deux configurations expérimentales différentes, l'une permettant d'étudier l'émission des boîtes dans le plan (xy) et l'autre dans le plan (yz) . Ces deux configurations sont représentées sur la figure (5.10). Dans les deux cas, nous plaçons un polariseur vertical sur le chemin d'excitation et une lame demi-onde suivie d'un analyseur horizontal sur le chemin de détection. Ainsi, en laissant fixe la direction de l'analyseur et en faisant tourner, avec

un pas de 5° la lame demi-onde, nous sommes capable d'étudier la polarisation de la luminescence émise par les boîtes, tout en nous affranchissant de la sensibilité en polarisation de notre système de détection. Notons que le polariseur vertical fixe sur le chemin d'excitation est a priori inutile sous excitation non résonnante, puisqu'en raison des processus de relaxation, la mémoire de la polarisation d'excitation est perdue, mais nous l'utilisons toutefois en toute circonstance pour modifier le moins possible les conditions expérimentales d'une expérience à l'autre.

5.3.2 Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation non résonnante

Dans un premier temps, pour étudier les axes propres d'une boîte dans le plan (xy) , nous excitons hors résonance, au niveau de la couche de mouillage ($\lambda \approx 870 \text{ nm}$), dans la direction guidée et détectons la luminescence dans la direction perpendiculaire à l'échantillon, comme schématisé sur la figure (5.10.a). Cette configuration permet d'accéder aux diagrammes polaires des deux états excitoniques $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$. À partir du diagramme polaire de l'intensité totale normalisée, nous déterminons dans un premier temps l'angle ψ entre la direction principale de polarisation et l'axe y . Il nous est alors aisé, en ajustant nos points expérimentaux au moyen de l'expression (5.68), de déterminer le paramètre de mélange des trous lourds, β , relié au contraste du diagramme. Munis de ces deux paramètres de mélange, nous pouvons alors ajuster les diagrammes des deux états propres en utilisant les deux expressions (5.62) afin de déterminer l'angle θ que forme la direction principale du potentiel de confinement avec l'axe y . Rappelons que nous pouvons dans cette configuration, omettre le paramètre γ qui joue un rôle négligeable dans le plan (xy) .

Les expressions (5.68) et (5.62), ne prennent pas en compte les modifications que pourrait éventuellement apporter l'anisotropie intrinsèque du guide d'onde, dans lequel se trouvent les boîtes, sur l'émission des deux états propres. Pour connaître l'influence de ces guides, nous avons réalisé les simulations FDTD présentées au second chapitre, dans le cas d'un dipôle oscillant de direction parallèle à celle du guide d'onde et dans celui d'un dipôle perpendiculaire à cette direction. Nous avons ainsi déterminé le rapport des champs électriques détectés dans les deux cas : $E_\perp/E_\parallel = 95\%$, pour des boîtes situées à plus de $0.2 \mu\text{m}$ des bords du guide. Dans ce cas, l'intensité lumineuse de chaque état est modifiée

et devient :

$$\left\{ \begin{array}{l} I_{\tilde{X}}(\alpha) = [\sqrt{1-\beta^2}(\cos\theta \cos\alpha - 0.95 \sin\theta \sin\alpha) \\ \quad - \frac{\beta}{\sqrt{3}}(-\cos(2\psi - \theta) \cos\alpha + 0.95 \sin(2\psi - \theta) \sin\alpha)]^2 \\ I_{\tilde{Y}}(\alpha) = [\sqrt{1-\beta^2}(\sin\theta \cos\alpha + 0.95 \cos\theta \sin\alpha) \\ \quad - \frac{\beta}{\sqrt{3}}(\sin(2\psi - \theta) \cos\alpha + 0.95 \cos(2\psi - \theta) \sin\alpha)]^2 \end{array} \right. \quad (5.98)$$

L'intensité totale s'écrit alors :

$$\begin{aligned} I_{nr}(\alpha) = & \left(1 - \frac{2}{3}\beta^2\right)(\cos^2\alpha + 0.9 \sin^2\alpha) \\ & + 2\beta\sqrt{\frac{1-\beta^2}{3}} [\cos(2\psi)(-\cos^2\alpha + 0.9 \sin^2\alpha) + 0.95 \sin(2\psi) \sin(2\alpha)] \end{aligned} \quad (5.99)$$

Plusieurs simulations réalisées avec ces nouvelles expressions nous ont montré que l'influence des guides n'était observable que dans certaines conditions très particulières ($\beta > 0.3$ et $35^\circ < \psi < 55^\circ$), pour lesquelles les paramètres de mélange trouvés diffèrent de moins de 10% par rapport à ceux déterminés au moyen des expressions (5.62). Nous pouvons donc ne pas prendre en compte cette correction et négliger l'influence des guides d'onde sur l'émission des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$.

5.3.2.a Protocole expérimental

La figure (5.11.a) représente un spectre de micro-photoluminescence, dans une polarisation donnée, réalisé dans la première configuration, représentée figure (5.10.a). Pour analyser la polarisation de la luminescence émise par chaque boîte de ce spectre, nous faisons tourner la lame demi-onde par pas de quelques degrés et pour chaque angle, nous acquérons un nouveau spectre. La figure (5.11.b) montre ainsi la superposition de huit spectres, réalisés pour différentes polarisations. La boîte émettant à 943.85 nm présentée ici présente un splitting de structure fine de 125 μeV , que nous résolvons avec notre dispositif expérimental. En moyenne, sur un tel spectre d'une vingtaine de boîtes, nous résolvons la structure fine de quatre ou cinq excitons, sans avoir besoin d'utiliser l'interféromètre de Fabry-Pérot.

Sur la (5.11.c), nous voyons en bleu le spectre d'émission de l'état $|\tilde{X}\rangle$ et en rouge celui de l'état $|\tilde{Y}\rangle$, polarisés à environ 80° l'un de l'autre. Nous voyons que pour les spectres intermédiaires, figurant sur la figure (5.11.b), nous pouvons distinguer l'émission des deux états, ce qui n'est pas le cas pour les spectres bleus et rouges.

Une fois déterminées les directions de polarisation des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, nous ajustons les courbes d'émission correspondantes au moyen de deux fonctions lorentziennes, chacune

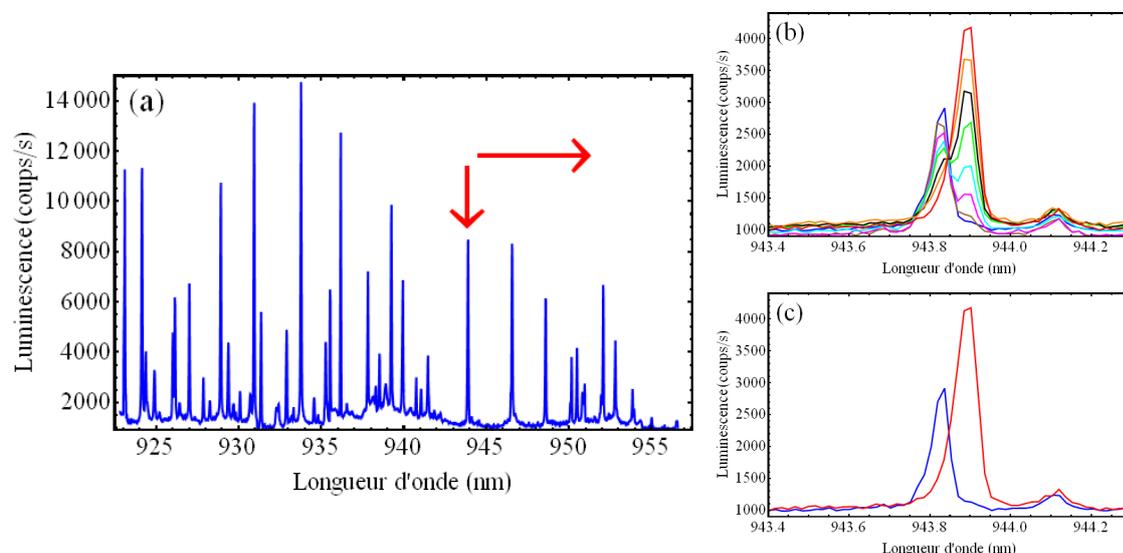


FIGURE 5.11 : (a) Spectre de micro-photoluminescence dans une polarisation donnée ($\alpha = 0^\circ$). (b) Raie de luminescence d'une boîte pour $\alpha = 5^\circ$ (bleu), $\alpha = 15^\circ$ (marron), $\alpha = 30^\circ$ (magenta), $\alpha = 45^\circ$ (vert), $\alpha = 60^\circ$ (noir), $\alpha = 75^\circ$ (orange), $\alpha = 85^\circ$ (rouge). (c) Émission des états $|\tilde{X}\rangle$ (bleu) et $|\tilde{Y}\rangle$ (rouge).

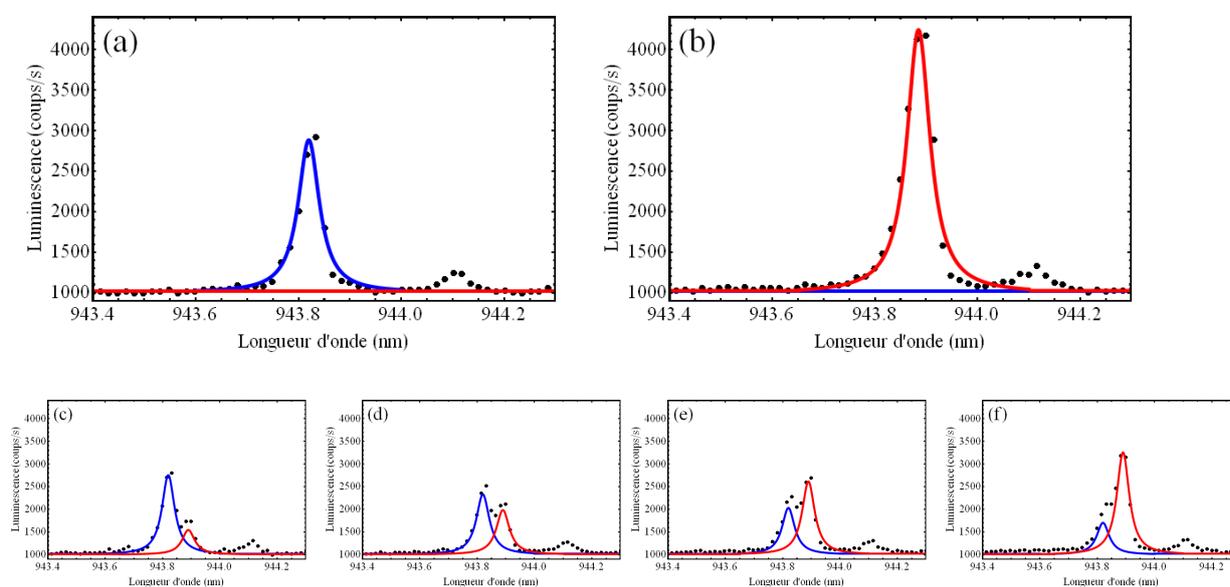


FIGURE 5.12 : Ajustement par deux fonctions lorentziennes des spectres d'émissions d'une boîte quantique, pour différentes polarisations : (a) $\alpha = 5^\circ$, (b) $\alpha = 85^\circ$, (c) $\alpha = 15^\circ$, (d) $\alpha = 30^\circ$, (e) $\alpha = 45^\circ$, (f) $\alpha = 60^\circ$.

centrée sur un des états. Cela est montré sur les figures (5.12.a) et (5.12.b), où sont ajustées les deux courbes de la figure (5.11.c). La détermination de la largeur à mi-hauteur de ces deux courbes nous permettra par la suite d'ajuster les courbes intermédiaires au moyen des deux fonctions lorentziennes ainsi déterminées, comme cela est illustré par les courbes (5.12.c-d). L'aire des lorentziennes rouges (état $|\tilde{Y}\rangle$) et bleues (état $|\tilde{X}\rangle$) sont ensuite reportées sur des diagrammes polaires, tels que ceux représentés sur la figure (5.13), les diagrammes de la figure (5.13.d) correspondant à la boîte présentée dans les figures (5.11) et (5.12).

5.3.2.b Constatations expérimentales

Sur la figure (5.13) sont présentés les diagrammes polaires de quatre boîtes situées dans la région de $1 \mu m^2$, dont le spectre est présenté sur la figure (5.11.a). En rouge et bleu sont représentés respectivement les états $|\tilde{Y}\rangle$ et $|\tilde{X}\rangle$ tandis qu'en violet est tracée l'intensité totale d'émission générée par la recombinaison radiative de l'exciton neutre. L'ajustement des points expérimentaux figure en traits pleins et est réalisé au moyen des expressions (5.68) et (5.62).

Les figures (5.13.a) et (5.13.b), illustrent que pour les mêmes paramètres β et ψ , différentes intensités et directions de polarisation peuvent être trouvées pour l'émission des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$. Cela s'explique par les différences de potentiel de confinement dont la direction principale d'anisotropie est donnée par l'angle θ . Les figures (5.13.c) et (5.13.d) montrent les deux cas extrêmes rencontrés dans la région présentée. Pour la première, aucun mélange des états de valence n'est mesuré, les axes propres sont donc perpendiculaires entre eux, bien qu'ils soient inclinés par rapport aux axes cristallographiques, et ont la même intensité d'émission. La seconde présente un fort mélange, l'émission de l'état $|\tilde{Y}\rangle$ étant deux fois plus intense que celle de l'état $|\tilde{X}\rangle$.

Une première constatation est que pour les quatre boîtes, l'angle ψ que forme l'axe principal de polarisation de l'intensité totale avec la direction y est le même et vaut $\psi = 10^\circ$. C'est le cas de quinze boîtes sur les dix-neuf situées dans cette région de $1 \mu m^2$ et dont nous avons analysé en polarisation la luminescence de l'exciton neutre. C'est une constatation générale que nous avons faite pour toutes les zones de $1 \mu m^2$ étudiées, dans la grande majorité des cas la direction principale de l'intensité totale est la même pour presque toutes les boîtes se situant dans chaque zone.

En passant d'une zone de $1 \mu m^2$ à une autre, nous observons en revanche des variations de ce paramètre ψ . Ainsi, sur la figure (5.14) sont représentés les diagrammes polaires de deux boîtes situées toutes deux dans une même région de $1 \mu m^2$, celle-ci se trouvant au niveau du même guide d'onde que la région 1 précédemment considérée, mais distante de celle-ci d'une vingtaine de micromètres. Dans cette seconde région, quatorze boîtes sur

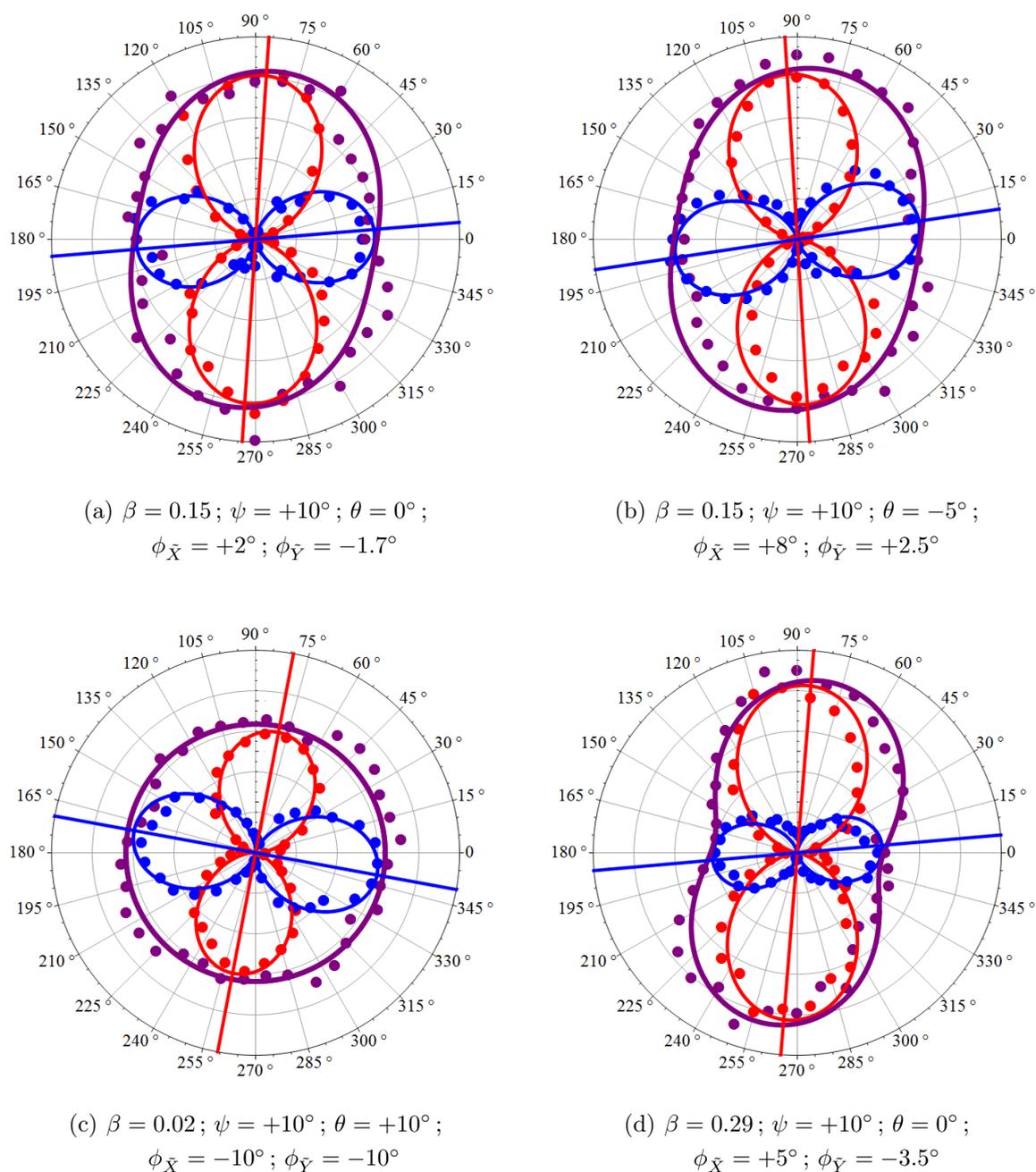


FIGURE 5.13 : Diagrammes polaires de quatre boîtes quantiques situées dans une région de $1 \mu\text{m}^2$ (région 1). Les points expérimentaux représentent, en rouge l'état $|\tilde{Y}\rangle$, en bleu l'état $|\tilde{X}\rangle$, en violet l'émission totale et ils sont ajustés au moyen des expressions (5.68) et (5.62) afin de déterminer les paramètres de mélange et la direction θ du potentiel de confinement.

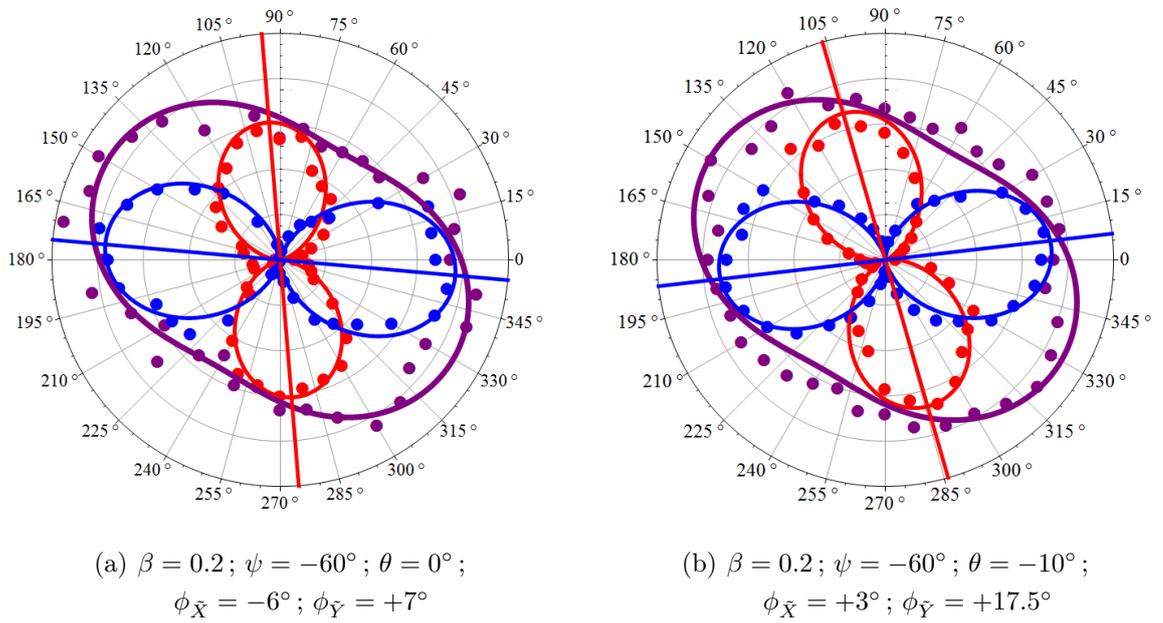


FIGURE 5.14 : Diagrammes polaires de deux boîtes quantiques situées dans une région de $1 \mu\text{m}^2$ (région 2). Les points expérimentaux représentent, en rouge l'état $|\tilde{Y}\rangle$, en bleu l'état $|\tilde{X}\rangle$, en violet l'émission totale et ils sont ajustés au moyen des expressions (5.68) et (5.62) afin de déterminer les paramètres de mélange et la direction θ du potentiel de confinement.

les dix-sept étudiées ont le même paramètre de mélange ψ , mais celui-ci est maintenant $\psi = -60^\circ$. Nous constatons par ailleurs encore une fois sur ces deux figures que pour les mêmes paramètres β et ψ , l'émission des états propres n'est pas la même pour les deux boîtes.

longueur d'onde	β						
923.1 nm	0.25	930.9 nm	0.23	937.8 nm	0.17	946.6 nm	0.1
924.2 nm	0.15	931.3 nm	0.05	939.2 nm	0.21	948.6 nm	0.26
927.0 nm	0.13	932.9 nm	0.15	939.9 nm	0.06	952.0 nm	0.18
928.9 nm	0.32	933.8 nm	0.02	941.4 nm	0.03	952.8 nm	0.16
929.4 nm	0.07	936.2 nm	0.21	943.9 nm	0.29		

TABLE 5.2 : Paramètre de mélange dans le plan (xy) dans la région 1 pour un ensemble de dix-neuf boîtes étudiées.

Nous remarquons par ailleurs que le paramètre de mélange β lui varie fortement dans une même zone de $1 \mu\text{m}^2$. En effet, les tableaux (5.2) et (5.3) recensent les valeurs de β

longueur d'onde	β	longueur d'onde	β	longueur d'onde	β	longueur d'onde	β
923.6 nm	0.23	933.7 nm	0.14	939.2 nm	0.29	946.4 nm	0.15
926.1 nm	0.18	935.6 nm	0.11	941.2 nm	0.2	952.7 nm	0.03
931.6 nm	0.13	936.1 nm	0.24	943.6 nm	0.06		
932.5 nm	0.18	938.2 nm	0.07	943.9 nm	0.2		
933.3 nm	0.1	938.7 nm	0.15	944.4 nm	0.14		

TABLE 5.3 : Paramètre de mélange dans le plan (xy) dans la région 2 pour un ensemble de dix-sept boîtes étudiées

obtenues pour les différentes boîtes étudiées dans les régions 1 et 2, ainsi que la longueur d'onde correspondant à la transition fondamentale de l'exciton neutre. Nous voyons que dans les deux cas, β peut varier dans une même région entre 0.02 et 0.3, il nous est même arrivé à un autre emplacement sur le même échantillon de le voir varier de 0 à 0.4. Nous constatons également l'absence apparente de corrélation entre la valeur du paramètre de mélange et l'énergie de la transition, comme nous le confirmerons ultérieurement. Les deux cas de figure extrêmes dans la région 1 sont représentés sur les figures (5.13.c) et (5.13.d). Notons que pour déterminer le paramètre ψ dans le cas (5.13.c), nous devons utiliser directement les états propres, puisque la polarisation de la luminescence totale est circulaire, ne présentant de ce fait pas de direction privilégiée permettant de déduire ψ .

Pour finir, intéressons nous au paramètre θ , qui définit la direction principale du potentiel de confinement. Comme nous le voyons aussi bien sur les diagrammes de la figure (5.13) que sur ceux de la figure (5.14), cette direction n'est pas forcément celle d'un axe cristallographique et varie d'une boîte à l'autre à l'échelle du micron. Remarquons en outre que les graphiques (5.13.a) et (5.13.b) correspondent aux mêmes paramètres de mélange $\beta = 0.15$ et $\psi = 10^\circ$, mais qu'en raison de la différence de direction du potentiel de confinement, les états propres ne sont pas les mêmes. Il en est de même pour les graphiques (5.14.a) et (5.14.b) où nous trouvons $\beta = 0.2$ et $\psi = -60^\circ$, avec des états propres dont l'intensité et l'orientation sont différentes d'une boîte à l'autre.

5.3.2.c Statistiques et interprétations

Comme nous l'avons mentionné dans la section précédente, nous avons constaté, sur l'ensemble de l'échantillon, que dans chaque zone de $1 \mu m^2$ correspondant à l'aire sélectionnée par le système confocal, se trouvent entre dix et vingt boîtes quantiques dont 75% à 100% d'entre elles présentent une identique direction ψ entre l'axe principal de polarisation et $[1\bar{1}0]$. En revanche, une étude réalisée sur toute la longueur d'un même guide d'onde montre que cette direction peut fortement varier sur une distance de $20 \mu m$.

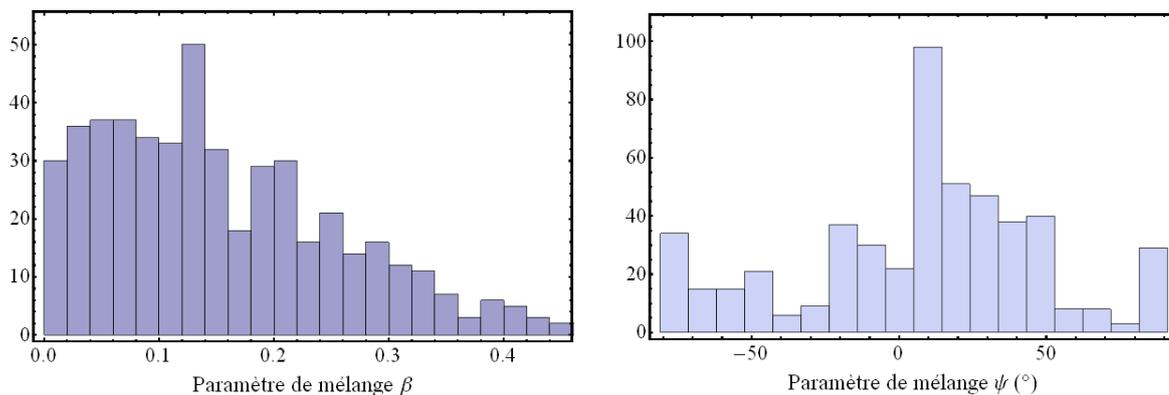


FIGURE 5.15 : Histogrammes des paramètres de mélange β et ψ .

Le potentiel de confinement dépendant du champ des contraintes, mais aussi de la forme et de la composition des boîtes, nous pouvons le supposer différent pour chaque boîte à l'intérieur d'une même aire de $1 \mu m^2$. Ceci semble d'ailleurs confirmé par la grande disparité d'angles θ (indiquant la direction d'anisotropie du potentiel de confinement), observée à cette échelle. Le seul paramètre constant sur des distances de l'ordre du micromètre semble être le champ des contraintes, nous pouvons donc, comme cela a été fait dans [193, 194], relier la paramètre ψ aux contraintes et considérer que la direction de l'axe principal de polarisation de la luminescence totale pour un exciton neutre donne la direction principale du champ des contraintes s'appliquant sur la boîte considérée. L'angle ψ est donc uniquement due aux contraintes et ne dépend pas du potentiel de confinement.

Notons finalement que, comme nous le constatons sur l'histogramme de la figure (5.15), l'angle ψ varie énormément sur l'échantillon entre -90° et $+90^\circ$, avec toutefois une direction privilégiée autour de $+10^\circ$. Nous avons en outre constaté, en traçant un histogramme pour chaque guide d'onde étudié, le même type de distribution, quel que soit le guide.

Le paramètre β varie lui en revanche beaucoup à l'échelle du micron. Il est toutefois difficile de démêler les raisons de ces fortes variations, puisque ce paramètre prend à la fois en compte la proportion de trous légers dans le mélange, elle même reliée d'une part aux contraintes à travers le hamiltonien de Bir-Pikus et d'autre part au confinement à travers le hamiltonien de Luttinger-Kohn. Le rapport du recouvrement des fonctions enveloppe des trous lourds et légers avec celle de l'électron de conduction, défini par (5.45) intervient également.

Notons cependant que les variations du rapport \mathfrak{R} du recouvrement des fonctions enveloppes, dans le type de boîtes quantiques que nous considérons sont trop faibles pour expliquer la disparité des paramètres de mélange β . Il est en outre courant pour ce type de boîtes quantiques [189, 195, 196] de considérer en première approximation $\mathfrak{R} \approx 1$ et dans

ce cas, la distribution du paramètre β indique une importante variation de la proportion de trous légers dans le mélange, et ce à l'échelle du micron. Il est alors difficile de déterminer l'origine de ces variations car l'observation d'un même paramètre ψ sur cette échelle semble indiquer un champ des contraintes homogène. Nous devons donc nous tourner vers la contribution du hamiltonien de Luttinger-Kohn dans le mélange car si les paramètres de Luttinger ne dépendent que du matériau considéré, les variations de composition d'une boîte à l'autre peuvent résulter en une différence dans ces paramètres. En effet, les boîtes ne sont jamais composées d'InAs pur, mais contiennent également une faible quantité de gallium [197, 198, 199], intégrée au cours de la croissance et différente pour chaque boîte. Par ailleurs, les termes du hamiltonien de Luttinger-Kohn ne dépendent, dans les boîtes, que des dimensions du confinement et sont de ce fait différentes pour chaque boîte. Il ne semble donc pas justifié dans les boîtes auto-organisées d'InAs de considérer, comme c'est souvent le cas, que le mélange des états de valence serait uniquement dû aux contraintes, et de ne prendre alors en compte que le hamiltonien de Bir-Pikus en négligeant celui de Luttinger-Kohn.

Afin d'essayer de mieux comprendre le comportement du paramètre β , nous avons tracé ce dernier en fonction de la longueur d'onde d'émission. Comme nous l'avons déjà dit dans le premier chapitre lorsque nous avons observé l'absence de corrélation entre la valeur du splitting de structure fine δ_{FSS} et la longueur d'onde d'émission, nous ne pensons pas qu'il soit possible de relier de manière simple l'énergie d'émission des boîtes à la forme de leur potentiel de confinement, nous avons néanmoins tracé pour chaque aire d'un micron carré, le paramètre β de toutes les boîtes ayant le même paramètre ψ , en fonction de la longueur d'onde d'émission. Comme l'illustrent les figures (5.16.a) et (5.16.b), obtenues pour des zones de $1 \mu m^2$ différentes, pour un ψ donné il semble n'y avoir aucune relation entre la proportion de trous légers dans le mélange et la longueur d'onde d'émission d'une boîte. Sur la figure (5.16.c) est représenté, sur la totalité de l'échantillon, le paramètre β , quel que soit le ψ associé, en fonction de la longueur d'onde d'émission de chaque boîte étudiée, et aucun comportement caractéristique ne semble se dégager.

Finalement, sur la figure (5.16.d) est représenté l'évolution de β en fonction de la différence entre la direction de l'axe principal du potentiel de confinement et celle de l'axe principal du champ des contraintes. L'idée sous-jacente étant que deux boîtes soumises à un même champ de contraintes ne le ressentent pas de la même façon si celui-ci est parallèle ou perpendiculaire au potentiel de confinement. Le mélange créé par les contraintes serait alors différent pour chaque boîte et cela pourrait expliquer la disparité des paramètres β . Les courbes obtenues pour chaque zone d'un micron sont à l'image de la figure (5.16.d), obtenue elle pour un ensemble de régions de l'échantillon, c'est à dire qu'encore une fois aucune relation ne semble être mise en évidence.

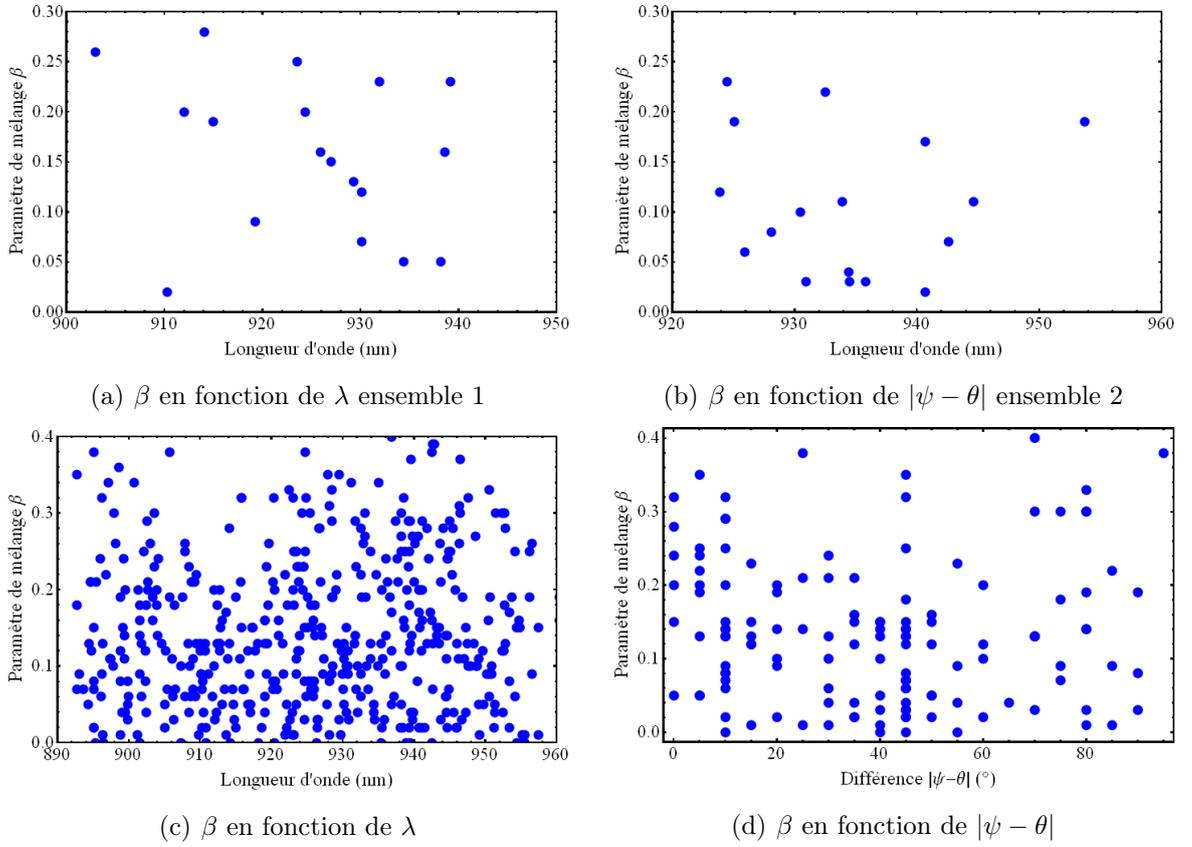


FIGURE 5.16 : Paramètre de mélange β en fonction de la longueur d'onde de la transition excitonique neutre et en fonction de la différence entre le direction des contraintes et celle du confinement $|\psi - \theta|$.

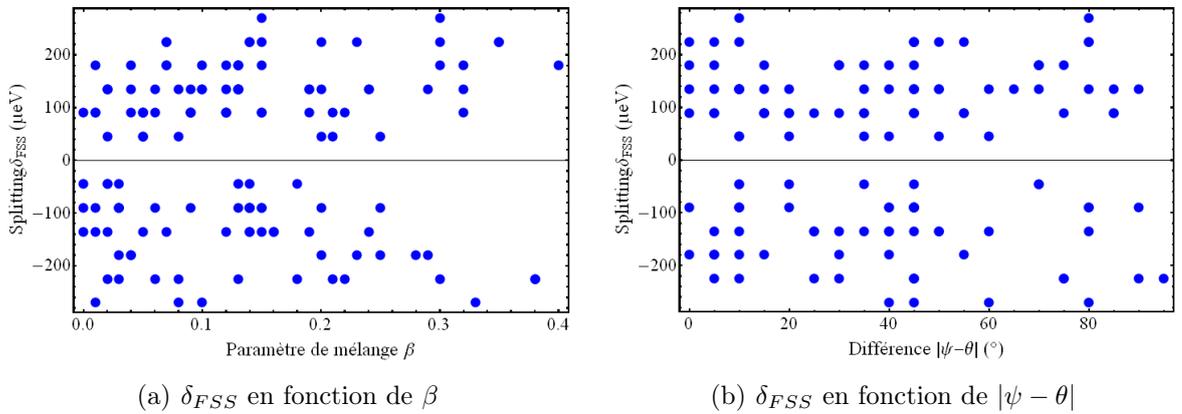


FIGURE 5.17 : Splitting de structure fine δ_{FSS} en fonction du paramètre de mélange β et en fonction de la différence entre le direction des contraintes et celle du confinement $|\psi - \theta|$.

Nous avons par ailleurs cherché à établir une relation entre la valeur du splitting de structure fine et le paramètre β , comme illustré sur la figure (5.17.a) où nous avons tracé δ_{FSS} en fonction de β . En effet le splitting traduisant normalement le confinement de la boîte, si la valeur de β est comme nous le pensons majoritairement influencée par le confinement une relation pourrait exister. Cela ne semble pas être le cas, même si les valeurs les plus élevées de β paraissent être obtenues plutôt pour un écart en énergie important entre les états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$. Cependant, comme nous avons moins de données dans cette zone nous ne pouvons être formels sur ce point. Signalons qu'il a été montré par [200, 201, 92, 202] que les contraintes pouvaient modifier la valeur du splitting de structure fine. Dans ce cas, cet écart en énergie ne reflète plus seulement le confinement et la possibilité que la disparité de β soit majoritairement liée au confinement, même dans le cas présent où aucune relation ne semble émerger entre β et δ_{FSS} , reste tout à fait plausible.

Nous avons également représenté sur la figure (5.17.b) l'évolution du splitting en fonction de la différence entre les directions ψ et θ pour estimer si un rapport entre les deux serait capable d'indiquer une dépendance du splitting d'échange anisotrope en fonction du champ des contraintes. Encore une fois cela ne semble pas être le cas, car si l'écart en énergie δ_{FSS} est modifié par les contraintes, il est originellement dû à l'anisotropie du potentiel de confinement, et donc comme à chaque fois, contraintes et confinement sont inextricablement liés.

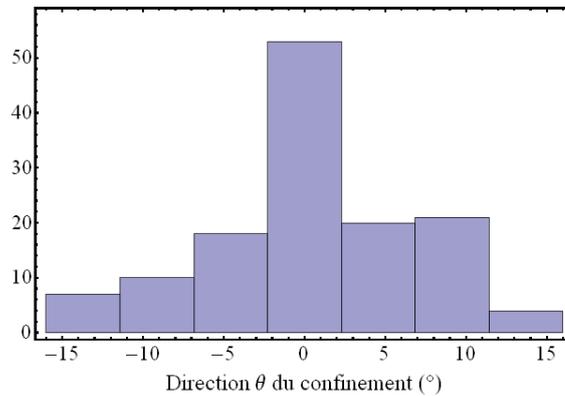


FIGURE 5.18 : Histogramme de l'angle θ , donnant la direction principale d'anisotropie du potentiel de confinement.

Pour finir, sur la figure (5.18) est tracé l'histogramme du paramètre θ indiquant la direction d'élongation du potentiel de confinement. Si celui-ci est dans 90% des cas compris entre -10° et $+10^\circ$ par rapport à la direction $[1\bar{1}0]$, il ne lui est parallèle que dans 40% des cas et sa valeur varie d'une boîte à l'autre, même à l'échelle du micromètre. Comme à cette échelle la valeur constante de ψ indique un champ de contraintes uniforme, celui-ci ne peut

à lui seul expliquer la déviation de la direction du potentiel de confinement par rapport à l'axe $[1\bar{1}0]$. Se pose alors la question d'un lien entre β , variant à l'échelle du micromètre et θ , supposant que les deux distributions ont une même cause. L'analyse des données n'a cependant pas mis en évidence de relation claire entre ces paramètres.

Nous venons ainsi de présenter les trois paramètres β , ψ et θ dont dépendent la direction et l'intensité d'émission des deux états propres de la structure fine excitonique. L'amplitude du mélange des états de la bande de valence est caractérisée par le paramètre $|\beta|^2$, compris dans notre échantillon entre 0% et 16% et a une valeur moyenne de 2.25%. Cette valeur est comparable à celles généralement trouvées pour les boîtes III-V auto-organisées, entre autre par Lin et al. [203] qui trouvent $0 < \eta < 0.13$, correspondant à $0\% < |\beta|^2 < 5\%$ et Ohno et al. [194] qui trouvent en moyenne $|\beta|^2 \approx 5\%$. Plus étonnant, un résultat presque comparable a été observé pour des boîtes III-V épitaxiées par gouttelette [204], où en dépit de l'absence de contraintes, il a été obtenu $2\% < |\beta|^2 < 9\%$. Cela nous conforte dans notre idée que les contraintes ne sont pas les uniques responsables du mélange des états de valence. Signalons que tous ces résultats sont généralement inférieurs à ceux obtenus pour des boîtes II-VI, pour lesquels la croissance en mode Stranski-Krastanov génère des dislocations [205]. Ainsi, Léger et al. [193] ont déterminé pour des boîtes auto-organisées de CdTe/ZnTe, en prenant $\mathfrak{R} = 0.8$ pour ce type de boîtes, $\rho/\Delta_{lh} \approx 0.75$, soit $\eta = (\rho/\Delta_{lh})(\mathfrak{R}/\sqrt{3}) \approx 0.34$ et donc $|\beta|^2 \approx 30\%$. Koudinov et al [206] ont eux déterminé dans des boîtes de CdSe/ZnSe, une amplitude un peu plus faible en trouvant $C(\beta) \approx 0.36$, soit $|\beta|^2 \approx 15\%$. Pour finir, informons le lecteur que les différents auteurs précédemment cités utilisant souvent des notations et conventions différentes, nous avons converti leurs résultats dans notre formalisme.

5.3.3 Polarisation de la luminescence dans le plan des boîtes, sous excitation résonante

Une fois connus les états propres d'une boîte quantique sous excitation non résonnante, et donc les paramètres β , ψ et θ , l'étude de l'émission sous excitation résonnante permet de déterminer le rapport $R = \mathcal{F}_{\tilde{Y}}/\mathcal{F}_{\tilde{X}}$ des forces d'oscillateur des états $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, en utilisant l'expression (5.75) pour ajuster nos résultats expérimentaux.

Sur la figure (5.19), sont représentés les diagrammes polaires de l'intensité totale d'émission lors de la transition excitonique fondamentale pour quatre boîtes, en rose sous excitation résonnante et en violet sous une excitation effectuée hors résonance dans la couche de mouillage. La première boîte présentée figure (5.19.a) illustre le cas pour lequel, malgré le mélange des états de valence, les axes propres de la boîte sont orientés selon les axes cristallographiques et seul l'état $|\tilde{Y}\rangle$ est alors excité par le laser polarisé verticalement. La boîte présentée dans la figure (5.19.b) est un cas que nous avons rencontré assez rare-

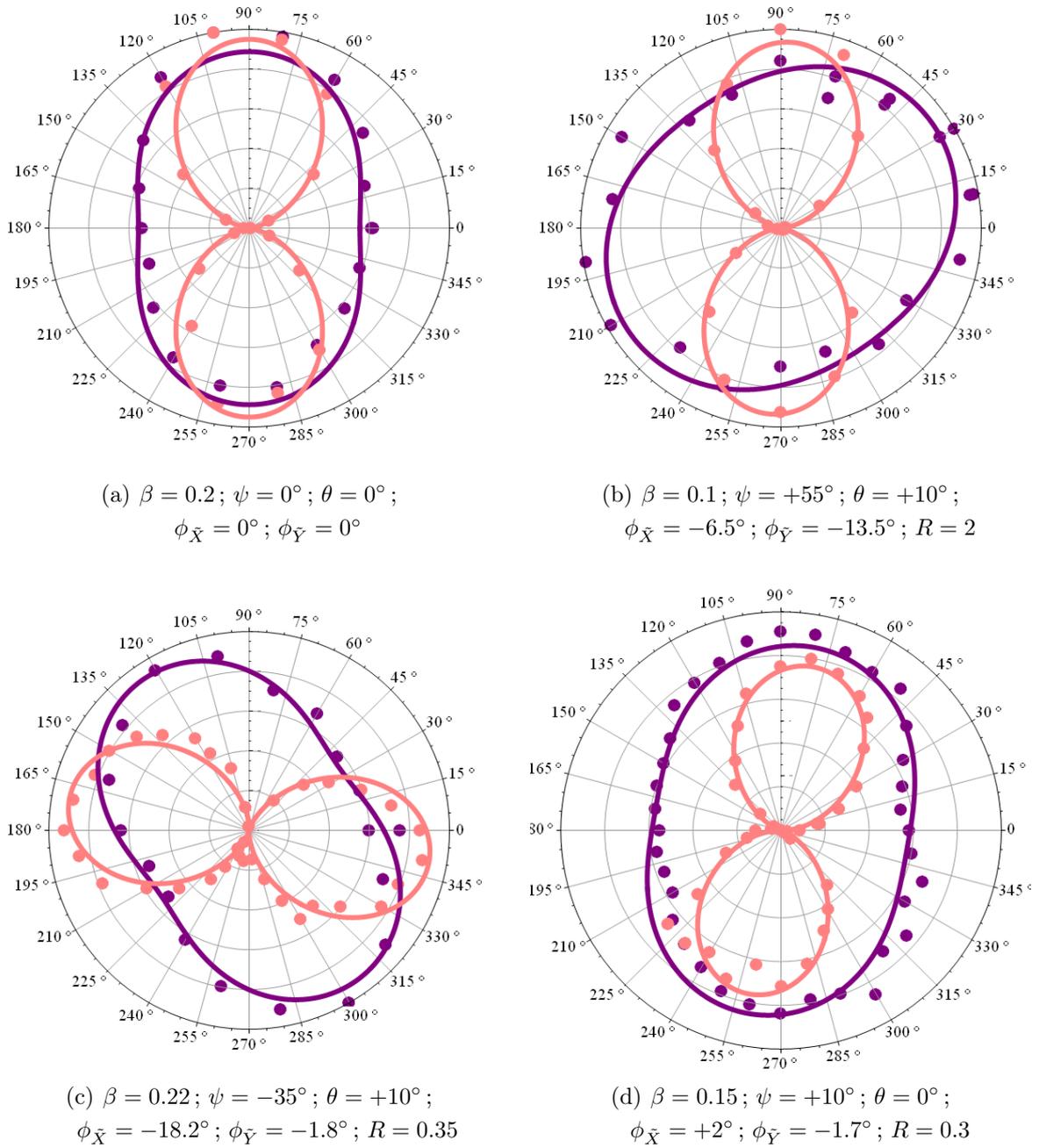


FIGURE 5.19 : Diagrammes polaires, en violet sous excitation non résonnante et en rose sous excitation résonnante, de la raie d'émission de l'exciton neutre pour quatre boîtes quantiques situées dans différentes régions de l'échantillon. Les points expérimentaux roses sont ajustés au moyen de l'expression (5.75) où nous rentrons les paramètres β , ψ et θ déterminés hors résonance. La figure (a) représentant le cas d'une boîte pour laquelle, malgré le mélange des états de valence, les états propres ne sont pas inclinés par rapport aux directions cristallographiques, seul l'état $|\tilde{Y}\rangle$ est donc excité. Le rapport des forces d'oscillateur trouvé pour les trois autres figures est : (b) $R = 2$, (c) $R = 0.35$, (d) $R = 0.3$.

ment, où le rapport des forces d'oscillateur est en faveur de l'état $|\tilde{Y}\rangle$, dans ce cas précis, $\mathcal{F}_{\tilde{Y}} = 2\mathcal{F}_{\tilde{X}}$. Les deux boîtes suivantes, (5.19.c) et (5.19.d) présentent le cas, le plus fréquemment rencontré sur cet échantillon, où la force d'oscillateur de $|\tilde{X}\rangle$ est la plus importante. Le diagramme (5.19.c) montre que malgré une excitation polarisée verticalement, l'inclinaison des états propres excitoniques par rapport aux directions cristallographiques peut engendrer une émission polarisée presque horizontalement. Sur la totalité de l'échantillon, un rapport moyen $R = 0.65$ a été trouvé, ce qui ne saurait s'expliquer uniquement par le rapport $I_{\perp}/I_{\parallel} = 0.9$ dû à l'anisotropie intrinsèque des guides d'onde.

Le rapport de l'intensité d'émission des deux états propres $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$ obtenu sous excitation non résonnante n'a, comme attendu, aucun lien avec le rapport des forces d'oscillateur obtenu par les expériences réalisées sous excitation résonnante. En effet, l'intensité de l'émission des deux états propres hors résonance ne dépend que des paramètres de mélange et de la direction d'élongation du potentiel de confinement et ne traduit pas le rapport de leurs forces d'oscillateur. Nous avons ainsi par exemple trouvé pour la boîte présentée sur la figure (5.13.b) un rapport des forces d'oscillateur $R = 0.3$, représenté figure (5.19.d), alors que hors résonance nous avons $I_{\tilde{X}} < I_{\tilde{Y}}$.

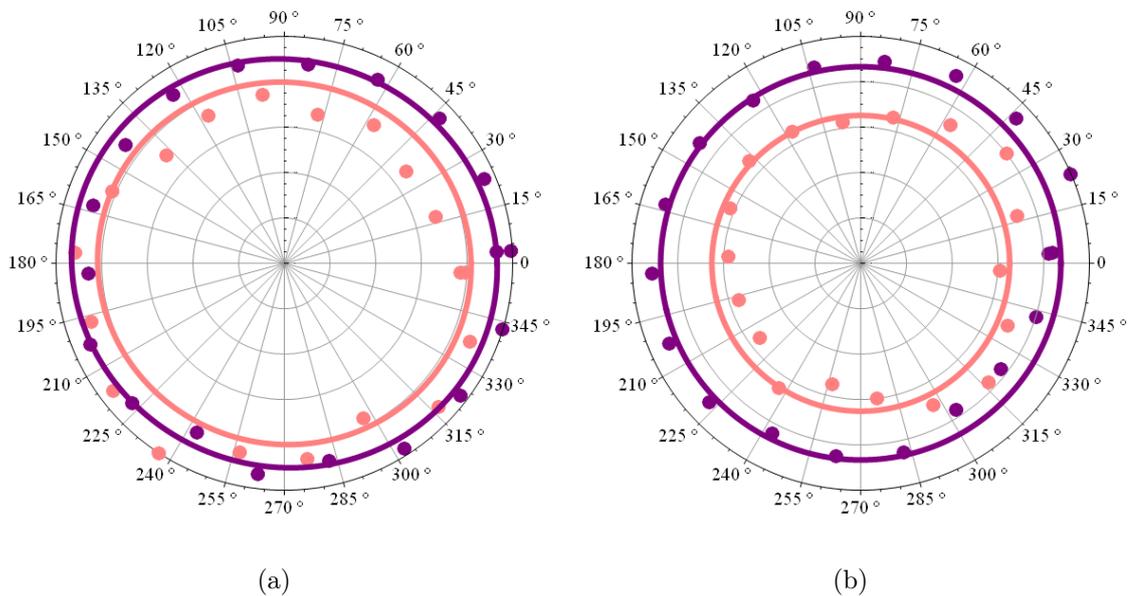


FIGURE 5.20 : Diagrammes polaires, en violet sous excitation non résonnante, en rose sous excitation résonnante, de la raie d'émission de l'exciton chargé pour deux boîtes quantiques situées dans deux zones différentes de l'échantillon.

L'étude en polarisation d'une raie de luminescence sous excitation résonnante est par

ailleurs un outil permettant de distinguer l'exciton neutre de l'exciton chargé, dans le cas où la structure fine n'est pas résolue. En effet, dans le cas d'une excitation non résonnante, lorsqu'un dispositif expérimental ne permet pas de séparer spectralement l'émission des états propres de l'exciton neutre, seule l'émission totale, de polarisation elliptique, est détectée. L'exciton chargé ne possédant pas de structure fine, sa luminescence est toujours polarisée circulairement en l'absence de mélange des états de valence et elliptiquement dans le cas contraire [74, 204, 194]. Il est donc impossible, sous excitation non résonnante de différencier les deux types d'excitons. En revanche, sous excitation résonnante, l'émission de l'exciton neutre devenant linéairement polarisée, elle se différencie de celle de l'exciton chargé qui reste elliptique.

Sur la figure (5.20) sont ainsi représentés les diagrammes polaires, sous excitation résonnante en rose et sous excitation non résonnante en violet, de la raie d'émission de l'exciton chargé pour deux boîtes quantiques différentes. Ce sont les deux seuls exemples d'exciton chargé que nous ayons trouvé sur l'ensemble de notre échantillon. Notons que ces diagrammes sont circulaires, indiquant ainsi l'absence de mélange pour ces deux boîtes. Les nombreuses études faites sur notre échantillon sous excitation résonnante semblent donc indiquer que la quasi-totalité des raies de luminescence que nous observons sur nos spectres de micro-photoluminescence hors résonance correspondent à la recombinaison radiative d'excitons neutres. Précisons par ailleurs que nous n'avons pu identifier parmi les nombreuses raies présentes sur chaque spectre non résonnant (comme l'illustre bien celui de la figure (5.11.a)), celle correspondant à l'émission de l'exciton neutre des deux boîtes précédemment mentionnées et qu'il nous a donc été impossible de comparer les diagrammes polaires de l'exciton neutre et de l'exciton chargé.

Pour finir, signalons que nos résultats en polarisation sont indépendants du jour où les mesures sont effectuées. En effet, la figure (5.21) montre les diagramme polaires de l'intensité totale, sous excitation résonnante et non résonnante d'une même boîte, étudiée plusieurs jours de suite. Les diagrammes représentés en noir ont été réalisées dix jours après les premiers et les paramètres de mélange, comme le rapport des forces d'oscillateur, restent les mêmes dans les deux cas. Cela va à l'encontre de ce qui a été observé dans [142], où une variation de la valeur du splitting δ_{FSS} , ainsi que de la direction des axes $|\tilde{X}\rangle$ et $|\tilde{Y}\rangle$, a été observée d'un jour sur l'autre et attribuée à une modification de l'environnement électrostatique des boîtes.

5.3.4 Polarisation de la luminescence suivant l'axe de croissance sous excitation non résonnante

La luminescence de 45% des boîtes étudiées présente une composante selon la direction de croissance z , caractérisée par un paramètre de mélange avec des trous légers de même

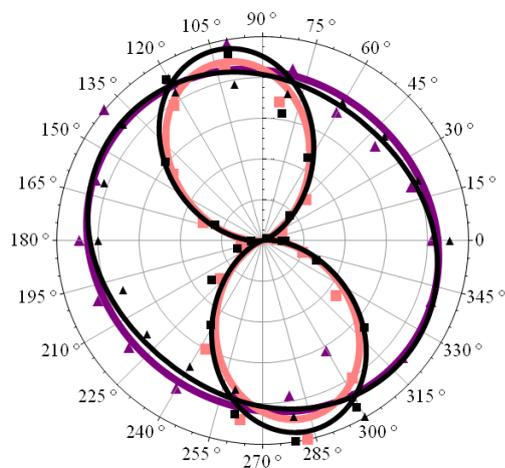
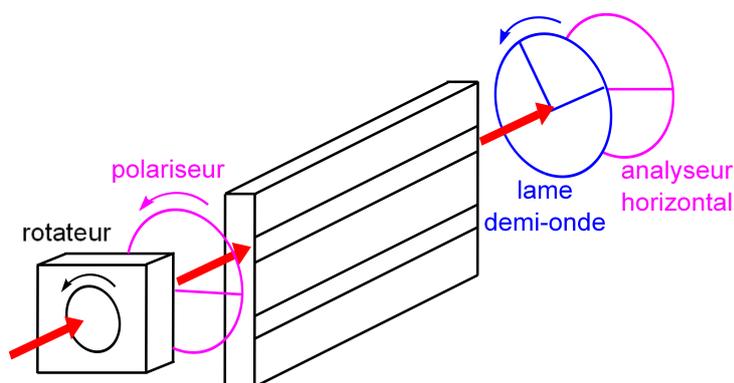


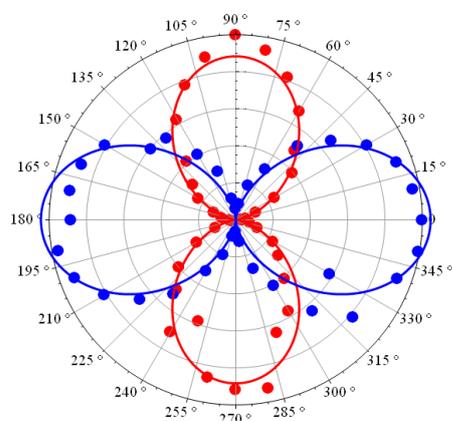
FIGURE 5.21 : Diagrammes polaires d'une boîte sous excitation non résonnante (violet) et résonnante (rose) réalisés une première fois et une seconde (noir) dix jours plus tard.

spin que les trous lourds, $\gamma > 0.1$. Pour accéder à ce nouveau paramètre de mélange, après avoir déterminé β , ψ et θ dans la configuration habituelle (excitation guidée, détection perpendiculaire au plan des boîtes), nous nous plaçons dans celle représentée sur la figure (5.10.b), en excitant les boîtes quantiques par la surface de l'échantillon et en détectant leur luminescence par la face clivée, au niveau de la sortie du guide d'onde dans lequel elles se trouvent. Nous accédons ainsi aux propriétés de polarisation dans le plan (yz). Notons que dans cette configuration, il est important d'étudier uniquement les boîtes situées très près de la sortie du guide, car en raison de la biréfringence de celui-ci, lorsque la luminescence se propage le long du guide, a polarisation, si elle n'est pas complètement verticale (selon y), a tendance à tourner, faussant ainsi les mesures.

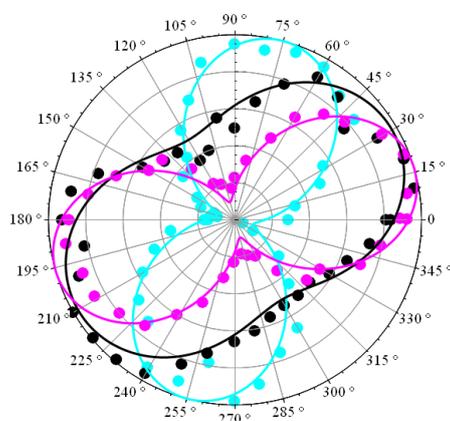
Sur la figure (5.22) est représentée la lumière transmise par le guide pour différentes polarisations incidentes. Pour réaliser ces courbes, nous avons placé sur le chemin du faisceau laser incident, polarisé verticalement, un rotateur de polarisation suivi d'un polariseur, placés tous deux juste à l'entrée du guide d'onde étudié, comme le schématise la figure (5.22.a). Nous avons fait tourner d'un même angle le rotateur et le polariseur afin de changer la polarisation de l'onde incidente, tandis que la lame demi-onde et le polariseur horizontal placés en sortie du guide nous ont permis d'analyser la polarisation de l'onde transmise. Nous voyons alors sur la figure (5.22.b) que lorsque le laser incident est polarisé verticalement ou horizontalement, sa polarisation n'est pas modifiée par la propagation dans le guide. Dès qu'elle se trouve inclinée par rapport à ces deux axes, la polarisation de la lumière en sortie du guide devient elliptique et change de direction, comme le montre la figure (5.22.c). Ainsi, pour une polarisation d'entrée à 45° , la polarisation de sortie est à seulement 30° de



(a) étude en polarisation du laser transmis par un guide d'onde



(b) 0° (bleu), 90° (rouge)



(c) 15° (magenta), 45° (noir), 75° (cyan)

FIGURE 5.22 : Étude de la biréfringence de nos guides d'onde. Le schéma (a) représente la configuration expérimentale utilisée pour faire varier la polarisation de l'onde incidente et analyser en sortie de guide la polarisation de l'onde transmise. Dans le graphique (b) est représentée l'onde transmise par le guide dans le cas d'un laser incident polarisé verticalement (rouge) ou horizontalement (bleu) et dans le graphique (c) pour un laser incident polarisé à 15° (magenta), à 45° (noir) ou à 75° (cyan) par rapport à l'horizontale. Les points expérimentaux sont ajustés au moyen de l'expression $a \cos^2(\alpha - \alpha_{\text{sortie}}) + b \sin^2(\alpha - \alpha_{\text{sortie}})$ où α_{sortie} est l'angle de la polarisation en sortie du guide étudié et a et b des variables d'ajustement.

l'horizontale et le contraste de l'ellipse vaut $(I_{\text{Max}} - I_{\text{min}})/(I_{\text{Max}} + I_{\text{min}}) \approx 30\%$ pour une distance de propagation dans le guide d'environ 3 mm.

Nous déterminons donc γ pour les boîtes situées près de la sortie de guide, en utilisant les paramètres β et ψ trouvés par une étude dans le plan des boîtes et en ajustant nos points expérimentaux par l'expression (5.97). Sur la figure (5.23) sont représentés les deux cas extrêmes rencontrés, pour deux boîtes différentes situées dans une même zone d'un micron carré. La figure (5.23.a) illustre le cas d'un paramètre γ nul, bien que la présence

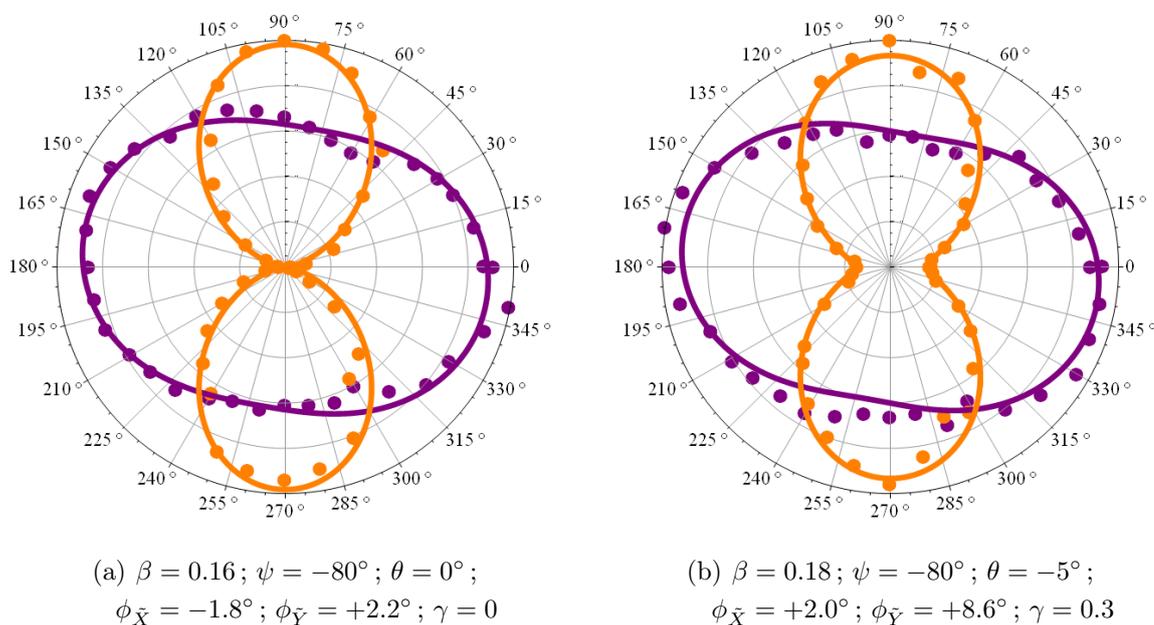


FIGURE 5.23 : Diagrammes polaires de l'intensité totale émise par deux boîtes situées dans la même zone de $1\mu\text{m}^2$, en violet dans le plan (xy) , en orange dans le plan (yz) . Les points expérimentaux sont respectivement ajustés au moyen de (5.62) et (5.97) et nous trouvons (a) $\gamma = 0$, (b) $\gamma = 0.3$.

d'un paramètre $\beta = 0.16$ indique un mélange entre les états de trous lourds et ceux de trous légers de spin opposé. La figure (5.23.b) montre un cas où le paramètre γ maximum observé dans notre échantillon est obtenu, à savoir $\gamma = 0.3$. Nous trouvons donc dans une même aire de l'ordre du micromètre carré des paramètres γ très différents, tandis que les deux boîtes ont le même paramètre ψ et un paramètre β voisin. 55% des paramètres γ ainsi déterminés sont inférieurs à 0.1, 40% sont compris entre 0.1 et 0.2 et seul 5% sont compris entre 0.2 et 0.3. À l'image du paramètre β , nous n'avons pu relier γ à aucun des autres paramètres obtenus pour chaque boîte et ne pouvons donc déterminer si il est le fruit de la partie Luttinger-Kohn du hamiltonien (5.31) ou s'il révèle la présence de contraintes de cisaillement, bien que la seconde hypothèse reste la plus probable.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la polarisation de la luminescence émise par une boîte quantique unique, dans le plan défini par les direction cristallographiques $[1\bar{1}0]$ et $[110]$, ainsi que dans le plan perpendiculaire, contenant la direction de croissance $[001]$. Nous avons pu attribuer à un mélange des états des bandes de valence Γ_8 , l'inclinaison des états de structure fine par rapport à la direction principale d'anisotropie du potentiel de

confinement, de même que la non-orthogonalité entre ces états et la différence dans leur intensité d'émission sous excitation non résonnante. En effet, les états lourds sont en réalité des états mélangés, combinaisons linéaires des états $m_J = \pm 3/2$ et des états $m_J = \pm 1/2$. L'énergie de ces nouveaux états de valence est modifiée par rapport à celle des états purs, tout comme les propriétés d'émission lors de la recombinaison d'un exciton formé par ces états de trous mélangés et un électron de conduction.

Un important mélange a ainsi été observé sur l'ensemble de notre échantillon, quelle que soit la densité de boîtes de la zone considérée (de $10 \mu m^{-2}$ à $100 \mu m^{-2}$). Si les origines de ce mélange restent encore indéterminées, nous pensons erroné de croire qu'il serait uniquement dû au champ des contraintes et indépendant des autres paramètres, tels que la forme et la composition des boîtes. Le paramètre de mélange dans le plan des boîtes peut être décomposé sous la forme d'un module β et d'un argument ψ . Si ce dernier est constant à l'échelle du micron, il varie beaucoup sur la totalité de l'échantillon et aucun lien n'a pu être établi avec la densité de boîtes. Le paramètre β varie en revanche significativement quelle que soit l'échelle considérée, et nous n'avons pour l'instant pu relier de telles variations à aucun des autres paramètres mesurés pour chaque boîte, y compris l'énergie d'émission ou le splitting de structure fine.

Nous avons par ailleurs observé en excitant les boîtes par la surface de l'échantillon et en détectant leur luminescence par la face clivée la présence d'une composante lumineuse parallèle à la direction de croissance [001]. Cette composante témoigne de la présence d'un mélange entre les états lourds et les états légers de même spin, qui avait été négligé jusque là, et est caractérisée par le nouveau paramètre de mélange γ , inférieur à 0.1 dans 55% des cas et compris entre 0.1 et 0.2 dans 40% des cas. Tout comme β , ce paramètre ne semble pas être relié de façon directe aux différents paramètres mesurés pour chaque boîte.

L'étude de la polarisation de l'émission d'une boîte quantique sous excitation non résonnante, puis résonnante, nous permet finalement de déterminer le rapport R des forces d'oscillateur des deux états propres excitoniques. Nous avons ainsi trouvé que celui-ci était compris entre 0.2 ($\mathcal{F}_{\bar{X}} = 5 \mathcal{F}_{\bar{Y}}$) et 2 ($\mathcal{F}_{\bar{Y}} = 2 \mathcal{F}_{\bar{X}}$) et remarqué qu'il était généralement en faveur de la transition $|X\rangle$, même lorsque celle-ci n'est pas la plus intense sous excitation non résonnante.

Finalement, il serait intéressant, une fois déterminés les paramètres β , ψ , θ et R , de réaliser des expériences sous excitation résonnante en excitant par la surface de l'échantillon et en détectant la luminescence émise par les boîtes par la tranche, en sortie de guide. Ainsi, nous serions capable de faire varier la polarisation d'excitation, afin de ne sélectionner qu'un seul état propre ou de choisir d'exciter pareillement les deux états et pourrions étudier

l'influence du système à trois niveaux sur les oscillations de Rabi et les mesures de contrôle cohérent.

Chapitre 6

Sources de photons uniques

Sommaire

6.1	Les différents types de rayonnement électromagnétique	238
6.1.1	Lumière cohérente	238
6.1.2	Distribution statistiques des différents rayonnements	239
6.1.3	Caractérisation de la statistique d'un rayonnement	240
6.2	Caractérisation d'une source de photons uniques	241
6.2.1	Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$	241
6.2.2	Montage Hanbury Brown et Twiss	244
6.2.3	Dégroupement de photons	245
6.3	Les sources de photons uniques	247
6.4	Résultats expérimentaux	250
6.5	Caractérisation d'une source de photons indiscernables	253
6.5.1	Coalescence	253
6.5.2	Réalisations expérimentales	256

Dans les troisième et quatrième chapitres de ce manuscrit, nous avons démontré comment il était possible d'initialiser l'état d'une boîte quantique unique au moyen d'une première impulsion lumineuse d'aire donnée, et par la suite de le manipuler au moyen d'une seconde impulsion dont l'aire et la phase relative par rapport à la première impulsion sont précisément contrôlées. Les boîtes quantiques semblent donc d'intéressantes candidates pour la réalisation de bits quantiques, même si la perte rapide de cohérence est une limite importante de ce type de système. L'un des avantages de l'utilisation de boîtes quantiques pour réaliser des bits quantiques est la possibilité de coupler celles-ci, afin de réaliser des qu-bits intriqués, étape nécessaire au traitement quantique de l'information. Avant de considérer le problème de l'intrication, il nous faut préalablement démontrer que les boîtes quantiques sont bien des sources de photons uniques et indiscernables. C'est à cela que nous consacrons désormais nos efforts et ce dernier chapitre fera état des premiers résultats obtenus dans cette voie. Nous présenterons dans un premier temps les propriétés particulières des sources de photons uniques et après avoir tracé l'état de l'art des différents types de sources à l'étude actuellement, nous démontrerons que les boîtes quantiques que nous étudions émettent bien des photons uniques, comme cela est démontré depuis longtemps sur ce type de système. Nous finirons par introduire la prochaine étape de notre étude consistant à démontrer l'indiscernabilité des photons émis par une même boîte quantique, excitée par deux impulsions successives.

6.1 Les différents types de rayonnement électromagnétique

Trois types de sources lumineuses peuvent être distinguées en fonction de la distribution statistique des fluctuations du signal lumineux qu'elles émettent [114], suivant les trois distributions statistiques possibles : la distribution poissonnienne caractérisant par exemple les sources laser, la distribution super-poissonnienne caractérisant entre autre les sources thermiques traditionnelles et la statistique sub-poissonnienne des sources de photons uniques.

6.1.1 Lumière cohérente

Commençons par considérer le cas d'une lumière cohérente, caractérisée par un champ électrique :

$$\mathcal{E}(\mathbf{r}, t) = \mathcal{E}_L \cos(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} + \phi) \quad (6.1)$$

d'amplitude \mathcal{E}_L , de pulsation ω , de vecteur d'onde \mathbf{k} et de phase à l'origine ϕ . En considérant l'amplitude et la phase de ce champ constantes dans le temps, l'intensité lumineuse moyenne $\langle \mathcal{I} \rangle$ est alors elle aussi constante, mais présente tout de même des fluctuations statistiques $\delta \mathcal{I}(t)$ sur de courtes échelles de temps, autour de la valeur moyenne constante $\langle \mathcal{I} \rangle$, de sorte que :

$$\mathcal{I}(t) = \langle \mathcal{I} \rangle + \delta \mathcal{I}(t) \quad (6.2)$$

Considérons le cas d'un rayon lumineux de puissance \mathcal{P} constante, de section \mathcal{S} . Le flux de photons s'écrit donc :

$$\Phi_{ph} = \frac{\mathcal{I}\mathcal{S}}{\hbar\omega} = \frac{\mathcal{P}}{\hbar\omega} \quad (6.3)$$

et le nombre moyen de photons dans une portion de rayon de longueur L est donnée par :

$$\langle n \rangle = \frac{\Phi_{ph}L}{c} \quad (6.4)$$

Si maintenant cette portion est divisée en N segments de longueur L/N , tels que la probabilité $\langle n \rangle/N$ de trouver un photon dans un de ces segments soit faible, la probabilité $\mathcal{P}(n)$ de trouver n photons dans la portion L équivaut à la probabilité de trouver n segments de longueur L/N contenant un photon et $(N - n)$ segment n'en contenant aucun, donnée par la loi binomiale :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(n) &= \frac{N!}{n!(N-n)!} \left(\frac{\langle n \rangle}{N} \right)^n \left(1 - \frac{\langle n \rangle}{N} \right)^{N-n} \\ &= \frac{1}{n!} \left(\frac{N!}{(N-n)!N^n} \right) \langle n \rangle^n \left(1 - \frac{\langle n \rangle}{N} \right)^{N-n} \end{aligned} \quad (6.5)$$

Dans la limite $N \rightarrow \infty$, la formule de Stirling nous permet d'obtenir :

$$\lim_{N \rightarrow \infty} [\mathcal{P}(n)] = \frac{\langle n \rangle^n}{n!} e^{-\langle n \rangle} \quad (6.6)$$

qui décrit une distribution statistique poissonnienne.

6.1.2 Distribution statistiques des différents rayonnements

Les photons émis par une source de lumière cohérente telle qu'une source laser présentent une distribution poissonnienne, caractérisée par la valeur moyenne $\langle n \rangle$ et les fluctuations autour de cette valeur données par :

$$\delta n = \sqrt{\langle n \rangle} \quad (6.7)$$

Il est donc possible de caractériser les sources lumineuses de la manière suivante :

- statistique sub-poissonnienne : $\delta n < \sqrt{\langle n \rangle} \leftrightarrow$ source quantique
- statistique poissonnienne : $\delta n = \sqrt{\langle n \rangle} \leftrightarrow$ laser

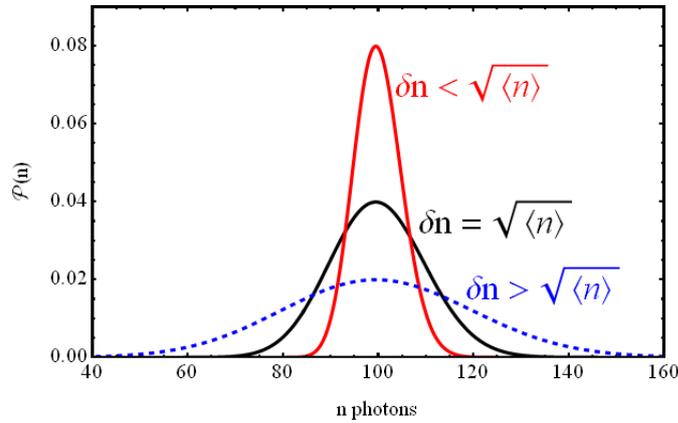


FIGURE 6.1 : Distribution statistique du nombre de photons pour $\langle n \rangle = 100$ dans le cas d'une lumière de nature poissonnienne (noir), sub-poissonnienne (rouge) et super-poissonnienne (bleu).

- statistique super-poissonnienne : $\delta n > \sqrt{\langle n \rangle} \leftrightarrow$ source thermique

Ces trois types de distribution sont représentées sur la figure (6.1). Nous voyons que la probabilité de trouver n photons dans une portion L de faisceau lumineux présente une distribution plus large dans le cas d'une lumière super-poissonnienne (bleu) que poissonnienne (noir) et plus fine dans le cas d'une lumière sub-poissonnienne (rouge). Les deux premiers cas de figure, à savoir les distributions super-poissonnienne (source thermique) et poissonnienne (source laser) peuvent être décrites au moyen des lois de l'électromagnétisme classique, tandis que seule la lumière sub-poissonnienne témoigne de la nature quantique du rayonnement et nécessite la quantification du champ électromagnétique.

6.1.3 Caractérisation de la statistique d'un rayonnement

Une lumière de distribution sub-poissonnienne idéale serait constituée d'une succession de photons, tous séparés les uns des autres par un intervalle de temps Δt identique. Dans ce cas, $\delta n = 0$ et $n = \langle n \rangle$, c'est à dire que toute mesure doit avoir la même issue et la probabilité de mesurer $\langle n \rangle$ vaut 1.

La statistique de photons mesurée dans la réalité est cependant bien différente [116, 207], quelle que soit la nature de la source lumineuse. En effet, l'efficacité du comptage de photons est réduite par trois principaux facteurs :

- les pertes lors de la collection de la luminescence, car l'émission se fait dans 4π *stradians* et la détection étant réalisée au moyen d'un objectif de microscope permettant de récolter sur 60° seulement, beaucoup de photons sont de ce fait perdus,
- les pertes lors de l'acheminement de la luminescence jusqu'au détecteur en raison de l'absorption et de la diffusion de celle-ci par les différents éléments optiques,
- les pertes lors de la détection en raison de l'efficacité quantique limitée du détecteur.

Les deux premiers processus engendrent une perte de photons aléatoire qui dégrade leur statistique et modifie les fluctuations δn de la source lumineuse, tandis que le dernier dégrade aléatoirement la corrélation entre la distribution statistique de photons et celles des photo-électrons qu'ils produisent.

Il faut donc bien différencier la nature statistique de la source lumineuse de la distribution statistique réellement mesurée et tenter d'améliorer au maximum la capacité de collection et l'efficacité de détection. C'est pour cela que sont actuellement à l'étude les nouveaux échantillons introduits dans le second chapitre, pour lesquels le plan des boîtes quantiques est inséré dans une cavité à miroirs de Bragg, dans laquelle sont gravés les guides d'onde uni-dimensionnels. Ce type d'échantillon nous a permis de multiplier par dix la luminescence collectée par la surface de l'échantillon.

6.2 Caractérisation d'une source de photons uniques

6.2.1 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$

Dans les années soixante fut introduite par Roy Glauber une méthode de mesure des corrélations quantiques du champ électromagnétique, à différents ordres pour caractériser les propriétés physiques d'une source lumineuse [208, 209, 210]. Ainsi, la fonction d'autocorrélation en amplitude, $g^{(1)}$, permet de mesurer la cohérence spatiale ou temporelle d'une source lumineuse, tandis que la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$ permet elle de rendre compte de la nature purement quantique de certains rayonnements.

Dans la théorie quantique du rayonnement électromagnétique, le champ électrique est quantifié sous forme de modes de vibration et dans la jauge de Coulomb la solution des équations de Maxwell dans le vide peut se décomposer sur la base des ondes planes monochromatiques de pulsation $\omega_{\mathbf{k}}$, chacune associées à un mode k . Le champ électrique est alors remplacé par l'opérateur champ électrique $\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t)$ se mettant sous la forme :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, t) + \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}, t) \quad (6.8)$$

avec :

$$\begin{cases} \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, t) = i \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon_0 V}} \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}} e^{i(-\omega_{\mathbf{k}}t + \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})} \\ \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}, t) = -i \sum_{\mathbf{k}} \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{k}}}{2\epsilon_0 V}} \boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{k}} \hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger} e^{i(\omega_{\mathbf{k}}t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})} = (\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}, t))^{\dagger} \end{cases} \quad (6.9)$$

où $\hat{a}_{\mathbf{k}}^{\dagger}$ et $\hat{a}_{\mathbf{k}}$ sont respectivement les opérateurs création et annihilation d'un photon dans le mode k , $\boldsymbol{\epsilon}_{\mathbf{k}}$ le vecteur polarisation, ϵ_0 la permittivité du vide et V le volume de quantification.

La théorie de la photo-détection de Glauber repose sur un modèle simple de détecteur constitué d'un atome irradié par une onde incidente, celle-ci permettant l'ionisation de l'atome, qui s'effectue en libérant un électron. Dans l'approximation des grandes longueurs d'onde, la règle d'or de Fermi permet de déterminer la probabilité d'ionisation par unité de temps de l'atome situé en \mathbf{r}_0 , associée au passage du champ électromagnétique, de l'état initial $|i\rangle$ à un des états $|f\rangle$ du continuum des états finaux possibles :

$$\mathcal{P}_{if} = |\langle f | \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t) | i \rangle|^2 \quad (6.10)$$

Remarquons que seul la composante $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t)$ du champ est prise en compte dans cet élément de matrice car l'ionisation de l'atome est associée à l'absorption d'un photon, dont permet de rendre compte l'opérateur annihilation $\hat{a}_{\mathbf{k}}$. En sommant sur tous les états finaux $|f\rangle$ et en utilisant la relation de fermeture :

$$\sum_f |f\rangle \langle f| = 1 \quad (6.11)$$

nous déterminons le nombre de photo-électrons générés par unité de temps, autrement dit le taux de comptage du photo-détecteur (en supposant que chaque photon est détecté) :

$$\begin{aligned} \mathcal{I}(\mathbf{r}_0, t) &= \sum_f \mathcal{P}_{if} = \sum_f \langle i | \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_0, t) | f \rangle \langle f | \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t) | i \rangle \\ &= \langle i | \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_0, t) \cdot \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t) | i \rangle \end{aligned} \quad (6.12)$$

En introduisant la matrice densité :

$$\hat{\rho} = \sum_i \mathcal{P}_i |i\rangle \langle i| \quad (6.13)$$

où \mathcal{P}_i est la probabilité initiale de peuplement de l'état $|i\rangle$, afin de prendre en compte le cas où le champ est initialement dans un mélange statistique d'états purs, nous obtenons finalement :

$$\mathcal{I}(\mathbf{r}_0, t) = \text{Tr}[\hat{\rho} \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_0, t) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t)] = \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_0, t) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t) \rangle \quad (6.14)$$

Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$

Introduisons tout d'abord la fonction de corrélation en amplitude :

$$G^{(1)}(\mathbf{r}, t; \mathbf{r}', t') = \text{Tr}[\hat{\rho} \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}', t')] = \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}, t) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}', t') \rangle \quad (6.15)$$

nous pouvons alors réécrire :

$$\mathcal{I}(\mathbf{r}_0, t) = G^{(1)}(\mathbf{r}_0, t; \mathbf{r}_0, t) \quad (6.16)$$

Si nous considérons alors le cas de deux fentes d'Young positionnées en \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 , la superposition des champs issus de chaque fente, au niveau du détecteur placé en \mathbf{r}_0 s'écrit :

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_0, t) = A_1 \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_1, t_1) + A_2 \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_2, t_2) \quad (6.17)$$

où A_1 et A_2 sont des constantes complexes et $t_1 = t - |\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_1|/c$, $t_2 = t - |\mathbf{r}_0 - \mathbf{r}_2|/c$. L'intensité lumineuse mesurée par le détecteur est ainsi :

$$\begin{aligned} I(\mathbf{r}_0, t) &= |A_1|^2 G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_1, t_1) + |A_2|^2 G^{(1)}(\mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_2, t_2) \\ &\quad + 2 \operatorname{Re} \left\{ A_1^* A_2 G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) \right\} \end{aligned} \quad (6.18)$$

où nous reconnaissons l'expression classique de l'intensité lumineuse d'une onde électromagnétique passant par deux fentes d'Young, avec un terme d'interférence $2 \operatorname{Re} \{ A_1^* A_2 G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) \}$ qui s'annule lorsque le rayonnement issu des fentes n'est pas cohérent. Nous voyons donc comment la fonction de corrélation quantique normalisée (pour s'affranchir de la sensibilité du détecteur) du premier ordre :

$$g^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2)}{\sqrt{G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_1, t_1) G^{(1)}(\mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_2, t_2)}} \quad (6.19)$$

permet de rendre compte des propriétés de cohérence spatiale et temporelle d'une source lumineuse.

Fonction de corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}$

Introduisons maintenant la fonction [115, 116] :

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2; \mathbf{r}_3, t_3; \mathbf{r}_4, t_4) &= \operatorname{Tr}[\hat{\rho} \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_3, t_3) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_4, t_4)] \\ &= \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_3, t_3) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_4, t_4) \rangle \end{aligned} \quad (6.20)$$

La fonction de corrélation du second ordre normalisée, pour deux photons situés en \mathbf{r}_1 et \mathbf{r}_2 aux instant t_1 et t_2 s'écrit alors :

$$g^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{G^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2)}{G^{(1)}(\mathbf{r}_1, t_1) G^{(1)}(\mathbf{r}_2, t_2)} \quad (6.21)$$

soit :

$$g^{(2)}(\mathbf{r}_1, t_1; \mathbf{r}_2, t_2) = \frac{\langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle}{\langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_1, t_1) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_1, t_1) \rangle \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}_2, t_2) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}_2, t_2) \rangle} \quad (6.22)$$

En régime stationnaire, l'intensité lumineuse peut se mettre sous la forme :

$$\mathcal{I}(t) = \langle \mathcal{I} \rangle + \delta \mathcal{I}(t) \quad (6.23)$$

où la valeur moyenne $\langle \mathcal{I} \rangle$ est indépendante du temps et seules les fluctuations $\delta \mathcal{I}(t)$ autour de cette valeur moyenne contiennent la dépendance temporelle de l'intensité. Dans ce cas, l'origine des temps n'a pas d'importance et nous pouvons remplacer les variables temporelle t_1 et t_2 par t et $t + \mathcal{T}$. Comme de plus, seules les corrélations temporelles nous intéressent, nous pouvons nous affranchir des variables d'espace et écrire finalement :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) &= \frac{G^{(2)}(t, t + \mathcal{T})}{G^{(1)}(t) G^{(1)}(t + \mathcal{T})} \\ &= \frac{\langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(t) \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(t + \mathcal{T}) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(t + \mathcal{T}) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(t) \rangle}{\langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(t) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(t + \mathcal{T}) \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(t + \mathcal{T}) \rangle} \end{aligned} \quad (6.24)$$

soit :

$$g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) = \frac{\langle : \hat{I}(t) \hat{I}(t + \mathcal{T}) : \rangle}{\langle \hat{I}(t) \rangle \langle \hat{I}(t + \mathcal{T}) \rangle} \quad (6.25)$$

où " : " indique que les opérateurs création et annihilation de photons doivent être pris dans l'ordre normal. L'intensité pouvant s'écrire sous la forme d'une somme de l'intensité moyenne $\langle \hat{I}(t) \rangle$ et des fluctuations $\delta \hat{I}(t)$ autour de cette valeur, en régime stationnaire nous avons $\langle \hat{I}(t) \rangle = \langle \hat{I}(t + \mathcal{T}) \rangle = \langle \hat{I} \rangle$, d'où :

$$g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) = \frac{\langle : \hat{I}(t) \hat{I}(t + \mathcal{T}) : \rangle}{\langle \hat{I} \rangle^2} \quad (6.26)$$

La normalisation permet de s'affranchir de la sensibilité du détecteur. En effet, en tenant compte du rendement quantique η du détecteur, la probabilité de détecter un photon à l'instant t est $\mathcal{P}(t) = \eta \langle \hat{I}(t) \rangle$ et la probabilité conjointe de détecter un photon à l'instant t et un autre à l'instant $t + \mathcal{T}$ s'écrit :

$$\mathcal{P}(t, t + \mathcal{T}) = \eta^2 \langle : \hat{I}(t) \hat{I}(t + \mathcal{T}) : \rangle \quad (6.27)$$

En introduisant la probabilité conditionnelle $\mathcal{P}((t + \mathcal{T})|t) = \mathcal{P}(t, t + \mathcal{T})/\mathcal{P}(t)$ de détecter un photon en $(t + \mathcal{T})$ sachant qu'un photon a déjà été détecté en t , nous pouvons réécrire la fonction de corrélation du second ordre :

$$g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) = \frac{\mathcal{P}((t + \mathcal{T})|t)}{\mathcal{P}(t)} \quad (6.28)$$

6.2.2 Montage Hanbury Brown et Twiss

La mesure de la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$ se fait au moyen d'un dispositif type Hanbury Brown et Twiss (HBT) [211, 212], comme celui représenté sur la figure (6.2). Le flux de photons à analyser est envoyé sur un cube séparateur 50/50 non polarisant, permettant de le diviser en deux faisceaux d'égale intensité, étant chacun envoyé sur un détecteur. Les détecteurs, ici des photo-diodes à avalanche (APD), sont branchés aux deux entrées d'une carte d'acquisition reliée à un ordinateur. L'un des détecteurs, après

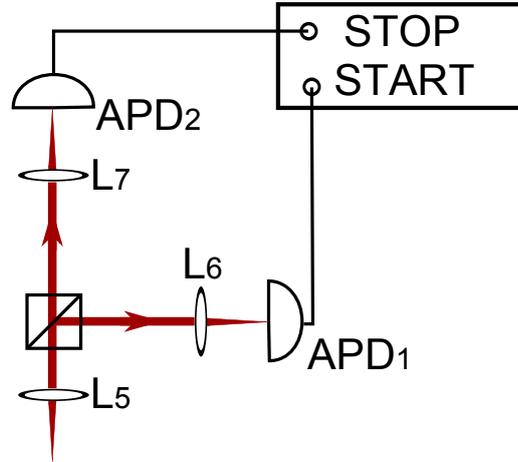


FIGURE 6.2 : Schéma du dispositif Hanbury Brown et Twiss (HBT) constitué d'un cube séparateur 50/50 et de deux détecteurs de photons, ici des photo-diodes à avalanche (APD).

avoir détecté un photon, déclenche un chronomètre (voie "START"), qui n'est arrêté que lorsque le second détecteur détecte à son tour un photon (voie "STOP").

Comme l'intensité lumineuse $\mathcal{I}(t)$ est proportionnelle au nombre de photons détectés, la fonction de corrélation du second ordre peut s'écrire en fonction du nombre n_1 de photons arrivant sur le détecteur 1 et du nombre n_2 de photons arrivant sur le détecteur 2 :

$$g^{(2)}(\mathcal{T}) = \frac{\langle n_1(t) n_2(t + \mathcal{T}) \rangle}{\langle n_1(t) \rangle \langle n_2(t + \mathcal{T}) \rangle} \quad (6.29)$$

$g^{(2)}(\mathcal{T})$ dépend donc, comme nous l'avons déjà mentionné, de la probabilité conjointe de détecter un photon sur le détecteur 1 à l'instant t et un photon sur le détecteur 2 à l'instant $t + \mathcal{T}$, c'est à dire la probabilité conditionnelle de détecter un photon à $t = \mathcal{T}$ sachant qu'un photon a déjà été détecté en $t = 0$. Nous voyons ainsi comment un dispositif HBT rend possible la détermination de la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$ et comment celle-ci permet de caractériser une source de photons uniques en mesurant $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 0$.

6.2.3 Dégrouperement de photons

Alors que nous avons précédemment distingué les trois types de rayonnement en fonction de leur distribution statistique de photons, sub-poissonnienne, poissonnienne et super-poissonnienne, nous pouvons, maintenant que nous avons introduit la fonction de corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$, les caractériser par :

- dégroupement de photons : $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1$
- lumière parfaitement cohérente : $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 1$
- groupement de photons : $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) > 1$

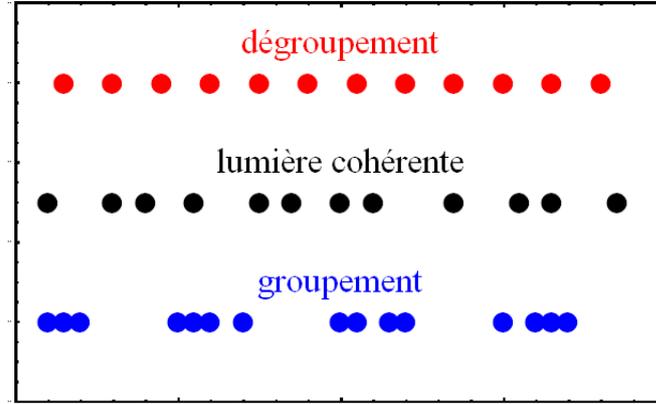


FIGURE 6.3 : Schématisation des trois types de rayonnement, en rouge est illustré le dégroupement de photons, en noir la lumière cohérente et en bleu le groupement de photons.

Ces trois types de comportement sont illustrés dans la figure (6.3) schématisant le flux de photons, lorsqu'il y a dégroupement des photons en rouge, lorsqu'il s'agit de lumière cohérente en noir et lorsqu'il y a groupement des photons en bleu.

Un rayonnement cohérent présente une distribution poissonnienne, avec un intervalle de temps aléatoire entre chaque photon. La probabilité de détecter un photon sur la voie STOP du HBT après en avoir détecté un sur la voie START est donc la même, quel que soit le délai \mathcal{T} d'où :

$$g^{(2)}(\mathcal{T}) = 1 \quad \forall \mathcal{T} \quad (6.30)$$

En effet, pour une source de lumière monochromatique parfaitement cohérente, nous avons bien :

$$g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) = \frac{\langle \mathcal{I}(t) \mathcal{I}(t + \mathcal{T}) \rangle}{\langle \mathcal{I} \rangle^2} = \frac{I_0^2}{I_0^2} = 1 \quad (6.31)$$

La valeur unitaire de la fonction de corrélation du second ordre traduit donc la stochasticté d'une distribution poissonnienne.

Lorsqu'il y a groupement de photons, comme c'est le cas par exemple d'un rayonnement thermique, ceux-ci sont émis par paquets et la probabilité d'en détecter deux au même instant est plus grande que lorsque le délai \mathcal{T} augmente, d'où :

$$\begin{cases} g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) > g^{(2)}(\mathcal{T}) \\ g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) > 1 \end{cases} \quad (6.32)$$

En effet, dans ce cas, lorsque $\mathcal{T} \ll \mathcal{T}_c$ le temps de cohérence de la source, comme $\langle \mathcal{I}^2(t) \rangle > \langle \mathcal{I}(t) \rangle^2$, nous avons bien :

$$g^{(2)}(t, t) = \frac{\langle \mathcal{I}(t) \mathcal{I}(t) \rangle}{\langle \mathcal{I}(t) \rangle^2} > 1 \quad (6.33)$$

tandis que lorsque $\mathcal{T} \gg \mathcal{T}_c$, nous obtenons dans le cas d'une lumière chaotique par exemple :

$$g^{(2)}(t, t + \mathcal{T}) = \frac{\langle \mathcal{I}(t) \mathcal{I}(t + \mathcal{T}) \rangle}{\langle \mathcal{I}(t) \rangle^2} = \frac{\langle \mathcal{I}(t) \rangle^2}{\langle \mathcal{I}(t) \rangle^2} = 1 \quad (6.34)$$

Dans le cas où les photons sont dégroupés, le flux de photons est régulier, tous les photons sont séparés du même intervalle de temps Δt et la probabilité de détecter un photon sur la voie STOP du HBT après en avoir détecté un sur la voie START est nulle à délai $\mathcal{T} = 0$ et augmente avec \mathcal{T} , jusqu'à atteindre 1 pour \mathcal{T} grand, d'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < g^{(2)}(\mathcal{T}) \\ g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1 \\ \lim_{\mathcal{T} \rightarrow \infty} g^{(2)}(\mathcal{T}) = 1 \end{array} \right. \quad (6.35)$$

Les deux premières inégalités sont donc en contradiction avec les prévisions de l'électromagnétisme classique et démontrent ainsi la nature purement quantique de ce type de rayonnement. Signalons que le dégroupement de photons et la distribution statistique sub-poissonnienne d'un rayonnement ne sont pas forcément la manifestation physique du même phénomène, même si dans de nombreux cas, les deux sont observés de concert. En effet, si le flux de photons schématisé en rouge sur la figure (6.3) présente bien une statistique sub-poissonnienne, Zou et Mandel ont démontré [213] qu'il n'y avait pas toujours réciprocity entre dégroupement et statistique sub-poissonnienne.

L'évolution de la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$ en fonction de \mathcal{T} est représentée dans la figure (6.4), pour les trois situations précédemment mentionnées, en rouge le cas du dégroupement de photons, en noir celui de la lumière parfaitement cohérente et finalement en bleu celui d'un rayonnement chaotique.

6.3 Les sources de photons uniques

La réalisation de sources de photons uniques, à statistique sub-poissonnienne est actuellement un vaste sujet de recherche, en raison de leur utilisation pour vérifier les propriétés fondamentales de la mécanique quantique (inégalités de Bell) [214, 215, 216], ainsi que dans les processus d'information quantique, à savoir la cryptographie [217, 218], la téléportation [219, 220] et le calcul quantique [7, 8, 221]. Cette section a pour but de présenter sommairement les différentes sources de photons uniques étudiées jusqu'à maintenant.

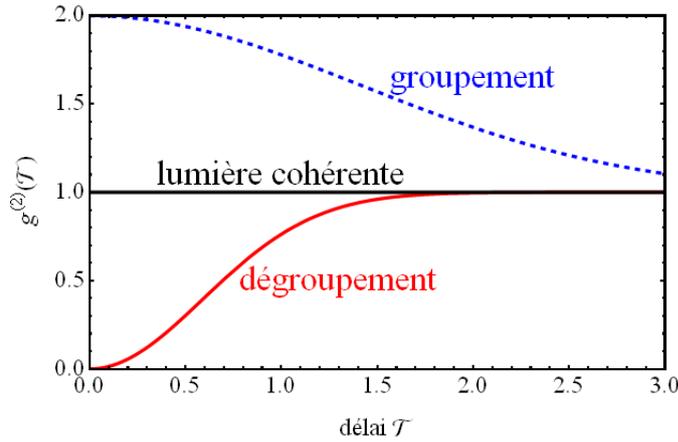


FIGURE 6.4 : Évolution de la fonction de corrélation du second ordre $g_s^{(2)}(\mathcal{T})$, en rouge lorsqu'il y a dégroupement de photons, en noir dans le cas d'un rayonnement parfaitement cohérent et en bleu lorsqu'il y a groupement de photons.

Atomes et ions piégés

C'est en 1977 qu'à l'Université de Rochester, Kimble, Dagenais et Mandel [222] ont réalisé pour la première fois une expérience permettant d'observer le dégroupement de photons, au moyen d'un jet dilué d'atomes de sodium pompés à la résonance par un laser. Cette première courbe expérimentale de $g^{(2)}(\mathcal{T})$ était bien sûr loin d'être parfaite et de nombreuses coïncidences ont été mesurées à $\mathcal{T} = 0$, en raison de la probabilité non nulle que deux atomes de sodium émettent en même temps. Des expériences ont ensuite été réalisées par le groupe de Walther à Munich [223], au moyen d'un ion de magnésium confiné par un piège quadripolaire électrique, permettant de mettre en évidence un très fort dégroupement avec $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0)$ très faible. Il a ensuite été réalisé des expériences sur atomes uniques, en piégeant ceux-ci au moyen d'une onde stationnaire établie dans une cavité optique résonnante [224, 225].

Fluorescence paramétrique

La fluorescence paramétrique est un phénomène d'optique non-linéaire mis en évidence en 1970 par Burham et Weinberg [226]. Celle-ci se produit lorsqu'un cristal biréfringent à forts coefficients non-linéaires est excité au moyen d'un laser dit "pompe" d'énergie $\hbar\omega_p$. Les photons incidents sont alors scindés en deux photons dits "jumeaux", un photon signal et un photon complémentaire (ou "idler"), de pulsation respective ω_s et ω_i telles que :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i \quad (6.36)$$

La séparation spatiale de ces deux photons permet alors d'utiliser la détection du photon "idler" pour annoncer le photon "signal", de manière à obtenir une source de photons

uniques annoncés. Ainsi Hong et Mandel ont démontré [227], en pompant un cristal non-linéaire de KDP au moyen d'un laser argon continu, que les photons signal émis par ce type de source étaient dégroupés et suivaient bien une statistique sub-poissonnienne.

L'inconvénient de ce type de sources est l'impossibilité de prédire l'instant de création des paires de fluorescence paramétrique et donc de produire des photons uniques "à la demande". Elles présentent cependant l'avantage de créer des paires de photons parfaitement corrélés entre eux temporellement et présentent ainsi un fort intérêt pour la réalisation de sources de photons intriqués.

Molécules

Dans les années quatre-vingt-dix, l'intérêt des scientifiques a commencé à se porter vers les molécules [228], qui comme les atomes peuvent être utilisées comme sources de photons uniques. Si au premier abord celles-ci semblent être de sérieuses candidates en raison de leurs caractéristiques chimiques bien connues, l'obstacle pour de tels systèmes réside cependant dans la capacité à les piéger en raison de leur grand nombre de degrés de liberté interne. Une alternative est alors de les intégrer en tant qu'impuretés dans une matrice solide, refroidie à l'hélium liquide pour limiter l'action des phonons du réseau [229, 230]. Pour pouvoir réaliser des expériences à température ambiante, des systèmes constitués d'une molécule insérée dans une cavité Fabry-Pérot ont par ailleurs été développés, permettant de mettre en évidence le dégroupement et l'émission de photons uniques à la demande [231, 232].

L'inconvénient de ce type de source reste toutefois l'importante propension des molécules à clignoter [233], c'est à dire que leur luminescence est intermittente et cet effet est bien sûr indésirable pour contrôler le flux de photons. Les molécules ont en outre tendance à photo-blanchir, c'est à dire à se dégrader (elles subissent une transformation chimique irréversible) et cesser d'émettre lorsque la durée d'excitation devient trop importante (au delà de quelques millisecondes à saturation).

Nanocristaux colloïdaux

Les nanocristaux sont des atomes artificiels colloïdaux, c'est à dire des boîtes quantiques réalisées par voie chimique, constituées de cristaux de quelques nanomètres de diamètre, éventuellement entourés d'une coquille [234]. Si il a été démontré qu'il s'agissait là de sources de photons uniques faciles à synthétiser et pouvant être utilisées à température ambiante [12], elles présentent cependant un clignotement bien plus important encore que celui des molécules [235, 236], attribué à des mécanismes complexes d'ionisation et d'effet Auger [237, 238], ce qui en limite fortement les applications.

Centres colorés du diamant

D'autres sources de photons uniques permettant de travailler à température ambiante sont les centres colorés du diamant ("NV" pour nitrogen vacancy) [239, 240]. Il s'agit d'impuretés d'azote s'insérant au niveau de lacunes dans la matrice cristalline du diamant [241, 242], qui s'assimilent à des émetteurs uniques piégés dans un réseau cristallin. Ces défauts qui présentent en outre l'avantage de ne pas clignoter et de ne pas photo-blanchir ont bien été caractérisés en 2000 comme sources de photons uniques, mais ils présentent l'inconvénient d'un important élargissement homogène ($\approx 50 \text{ nm}$) de leur profil spectral et le temps de vie de l'ordre de 10 ns de leur état excité limite leur fréquence d'émission [243].

Boîtes quantiques auto-organisées

Si les boîtes quantiques semi-conductrices auto-organisées sont limités par leur interaction avec les phonons du réseau et nécessitent de travailler à très basse température, ils présentent cependant de nombreux avantages, tant au point de vue de leur élaboration que de leur étude et de leurs applications.

Ce sont tout d'abord des systèmes pouvant être synthétisés industriellement et dont les matériaux permettent une intégration aisée à des dispositifs d'optique intégrée. En outre leur longueur d'onde d'émission dans l'infra-rouge proche et moyen permet d'envisager des applications dans le domaine des télécommunications [140].

Elles présentent par ailleurs une absence totale de clignotement et de photo-blanchissement et leur durée de vie radiative de l'ordre de la nanoseconde permet d'envisager un taux d'émission de l'ordre du gigaHertz, à plus forte raison si les boîtes quantiques sont insérées dans des micro-cavités permettant par effet Purcell [244] d'accélérer la recombinaison radiative de leur état excitonique fondamental [160, 245, 246, 247, 15]. La possibilité d'insérer les boîtes dans de telles structure permet de plus de s'approcher de la limite radiative $T_2 = 2T_1$, ce qui, comme nous le verrons par la suite, est une condition essentielle pour que les boîtes quantiques puissent être utilisées comme sources de photons indiscernables.

6.4 Résultats expérimentaux

Deux types de sources de photons uniques se distinguent, les sources de photons uniques "annoncés" [248, 249, 250] et les sources de photons uniques "déclenchées", ou "à la demande". Le principe de la source de photons uniques annoncés repose sur l'émission par fluorescence paramétrique et son inconvénient majeur réside dans l'impossibilité de synchroniser son émission qui se produit à des délais aléatoires. Au contraire, le principe d'une source de photons uniques à la demande repose sur l'excitation d'un émetteur unique

au moyen d'impulsions laser (ou électriques) de durée τ très courtes par rapport aux durées de relaxation du système, se répétant avec une période T_L bien supérieure à la durée d'émission T_1 , soit :

$$\tau \ll T_1 \ll T_L \quad (6.37)$$

Dans ces conditions, chaque impulsion trouve le système dans son état fondamental et a pour effet de le faire passer "instantanément" dans son état excité, état dans lequel il reste jusqu'à ce qu'au bout d'un temps T_1 il se désexcite en émettant un photon. Le système alors de nouveau dans son état fondamental ne peut plus émettre de photons jusqu'à l'arrivée de l'impulsion d'excitation suivante.

Pour caractériser en pratique une boîte quantique comme sources de photons uniques, il faut tout d'abord que celle-ci soit bien isolée spectralement. Cet émetteur unique d'une durée de vie de l'ordre de la nanoseconde est alors excité au moyen d'impulsions lumineuses de durée $\tau = 2 \text{ ps}$ avec un taux de répétition de 82 MHz , soit $T_L = 12.2 \text{ ns}$, vérifiant ainsi bien la condition (6.37). La luminescence de la boîte étudiée est donc focalisée sur la fente d'entrée du spectromètre dans lequel elle est dispersée spectralement, et dirigée sur la fente de sortie de celui-ci pour être ensuite envoyée sur le dispositif HBT.

Il est en pratique souvent difficile d'observer expérimentalement $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 0$. Le critère utilisé pour caractériser une source de photons uniques est alors $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1/2$, puisque pour une source émettant deux photons à la fois, nous avons $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 1/2$. En effet, si nous considérons le cas d'un état nombre $|n\rangle$ [115], constitué de n photons et vérifiant :

$$\begin{cases} a |n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle \\ a^\dagger |n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle \\ \langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle = \langle n \rangle \end{cases} \quad (6.38)$$

où a et a^\dagger sont les opérateurs annihilation et création et $\langle \hat{n} \rangle$ le nombre moyen de photons dans le mode, nous trouvons :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | n \rangle}{\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle^2} = \frac{\langle n(n-1) \rangle}{\langle n \rangle^2} \quad (6.39)$$

Nous voyons donc qu'un état à un photon se caractérise par $g^{(2)}(0) = 0$ et un état à deux photons par $g^{(2)}(0) = 1/2$.

Lorsqu'un photon est détecté par l'APD reliée à la voie "START" de la carte d'acquisition, se déclenche une horloge, arrêtée par l'arrivée d'un photon sur la seconde APD, branchée elle sur la voie "STOP". Ce second photon peut être généré soit par la même

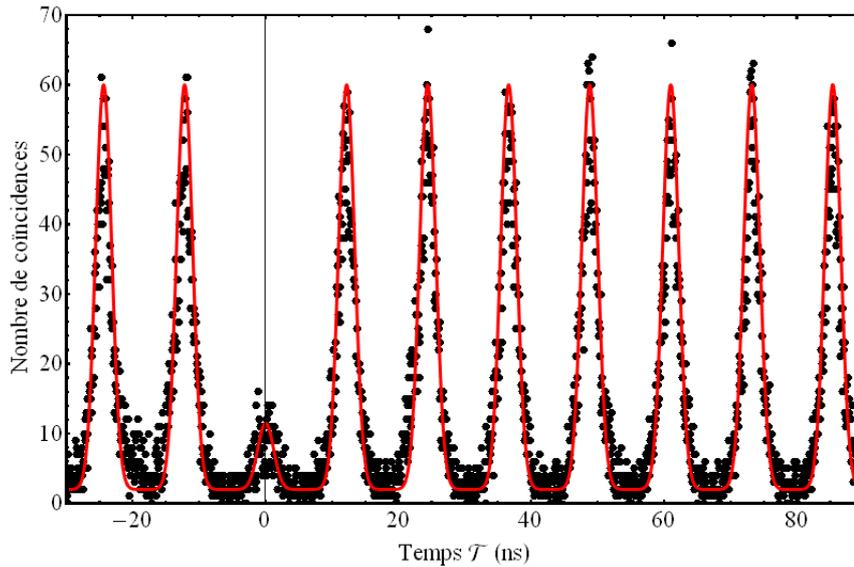


FIGURE 6.5 : *Histogramme du nombre de coïncidences en régime impulsionnel, pour une boîte quantique unique, en fonction du délai \mathcal{T} . L'ajustement des points expérimentaux a été réalisé par une somme de fonctions gaussienne de même largeur à mi-hauteur 1.8 ns, distantes de 12.2 ns*

impulsion laser que le premier et dans ce cas, il arrive au bout d'un temps $\mathcal{T} = 0$, soit par une autre impulsion, arrivant alors au bout d'un temps $\mathcal{T} = n T_L$, avec n entier. L'histogramme alors obtenu, représenté sur la figure (6.5) présente ainsi une série de pics, séparés temporellement les uns des autres de 12.2 ns et l'absence de pic en $\mathcal{T} = 0$ démontre que chaque impulsion entraîne l'émission d'un seul et unique photon. Notons la présence de quelques corrélations à délai nul, qui peuvent s'expliquer par la réémission d'un photon par la photo-diode "start" lorsqu'elle détecte un premier photon, celui-ci pouvant alors être détecté par la photo-diode "stop" [140]. Les points expérimentaux de la figure (6.5) sont ajustés au moyen d'une somme de fonctions gaussiennes de largeur à mi-hauteur 1.8 ns, espacées de 12.2 ns. Le rapport entre l'aire des pics latéraux et celle du pic central nous permet de déterminer $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 0.16$, ce qui remplit bien la condition de dégroupement $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1/2$. Signalons que cette mesure étant l'une des premières réalisées avec ce dispositif expérimental, elle a été effectuée à forte puissance d'excitation, ce qui est responsable de la valeur élevée de $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0)$.

Pour évaluer la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$, nous pouvons également exciter une boîte quantique (hors résonance) au moyen d'un laser Hélium-Néon continu. C'est ainsi que nous avons obtenu la figure (6.6), sur laquelle nous déterminons à délai nul $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) = 0.06$, remplissant bien la condition de dégroupement $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1/2$. Cette courbe expérimentale est très bruitée car réalisée avec un laser non stabilisé, mais elle permet néanmoins de mettre en évidence le dégroupement de photons.

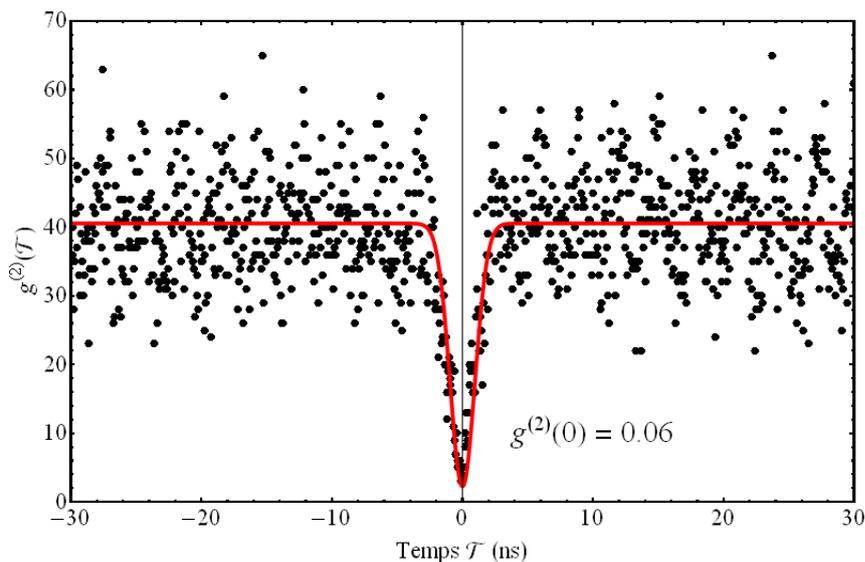


FIGURE 6.6 : *Histogramme du nombre de coïncidences en régime continu, pour une boîte quantique unique, en fonction du délai \mathcal{T} .*

De manière générale, que l'excitation soit impulsionnelle ou continue, nous trouvons $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 0.2$, montrant ainsi que les boîtes quantiques que nous avons étudiées tout au long de cette thèse sont bien des sources de photons uniques.

6.5 Caractérisation d'une source de photons indiscernables

En 1987, Hong, Ou et Mandel ont réalisé la première expérience d'interférences à deux photons au moyen de photons jumeaux créés par fluorescence paramétrique [251]. Cette expérience restée célèbre a permis la mise en évidence d'un phénomène purement quantique, la coalescence de photons, aussi connu sous le nom d'effet Hong-Ou-Mandel. Ces interférences réalisées au moyen de photons jumeaux donc parfaitement corrélés en temps peuvent également être obtenues en utilisant deux photons indiscernables issus de deux émetteurs différents ou successivement émis par un émetteur unique. De telles interférences ont été observées en utilisant des boîtes quantiques pour la première fois en 2002 par l'équipe de Yamamoto à l'Université de Stanford et c'est ce type d'expérience que nous souhaitons par la suite réaliser.

6.5.1 Coalescence

Considérons un cube séparateur 50/50, comme celui représenté sur la figure (6.7). Un photon incident par la voie e_1 peut être soit transmis vers la voie s_1 avec une probabilité

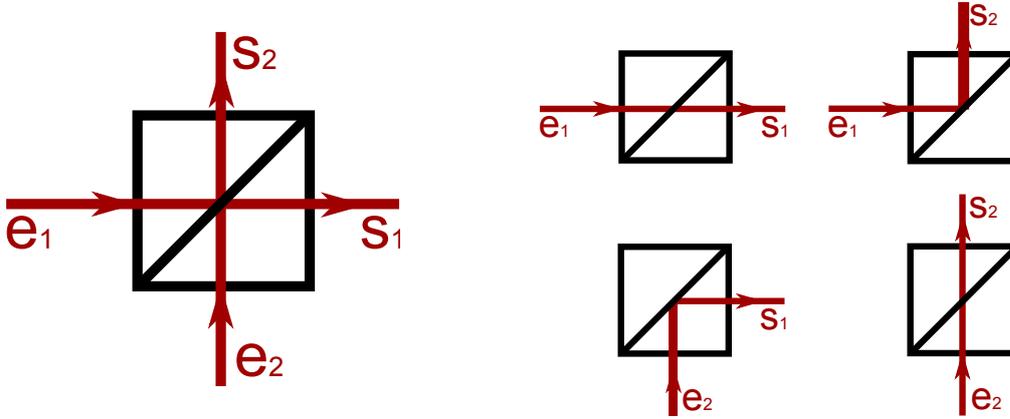


FIGURE 6.7 : Rayon lumineux incident sur un cube séparateur 50/50, quatre cas de figure.

1/2, soit réfléchi vers la voie s_2 avec une probabilité 1/2. L'état $|1_{e_1}\rangle$ peut donc s'écrire :

$$|1_{e_1}\rangle = \hat{a}_{e_1}^\dagger |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}_{s_1}^\dagger + \hat{a}_{s_2}^\dagger) |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|1_{s_1}\rangle + |1_{s_2}\rangle) \quad (6.40)$$

où \hat{a}^\dagger est l'opérateur création et $|0\rangle$ l'état du vide. De même, un photon incident par la voie e_2 peut être soit transmis vers la voie s_2 avec une probabilité 1/2, soit réfléchi vers la voie s_1 avec une probabilité 1/2. L'état $|1_{e_2}\rangle$ peut donc s'écrire :

$$|1_{e_2}\rangle = \hat{a}_{e_2}^\dagger |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}_{s_1}^\dagger - \hat{a}_{s_2}^\dagger) |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|1_{s_1}\rangle - |1_{s_2}\rangle) \quad (6.41)$$

Si nous considérons maintenant l'arrivée simultanée de deux photons indiscernables (même vecteur d'onde et même polarisation), l'un par la voie e_1 , l'autre par la voie e_2 , nous avons :

$$\begin{aligned} |1_{e_1}1_{e_2}\rangle &= \hat{a}_{e_1}^\dagger \hat{a}_{e_2}^\dagger |00\rangle = \frac{1}{2}(\hat{a}_{s_1}^\dagger + \hat{a}_{s_2}^\dagger)(\hat{a}_{s_1}^\dagger - \hat{a}_{s_2}^\dagger) |00\rangle \\ &= \frac{1}{2} (|2_{s_1}0_{s_2}\rangle + |1_{s_1}1_{s_2}\rangle - |1_{s_1}1_{s_2}\rangle + |0_{s_1}2_{s_2}\rangle) \\ &= \frac{1}{2} (|2_{s_1}0_{s_2}\rangle + |0_{s_1}2_{s_2}\rangle) \end{aligned} \quad (6.42)$$

Les photons sortent donc soit tous les deux par la voie s_1 avec une probabilité 1/2, soit tous deux par la voie s_2 avec une probabilité 1/2, tandis que la probabilité que chaque photon se dirige vers une sortie différente est nulle. Ce phénomène purement quantique, résultant de la nature bosonique des photons, est désigné par le terme de "coalescence" et permet de mettre en évidence l'indiscernabilité de deux photons.

Nous venons de considérer le cas de deux photons arrivant simultanément sur le cube séparateur, dans la réalité, chaque photon est représenté par un paquet d'onde d'une durée finie correspondant au temps de cohérence T_2 et la coalescence ne se produit que tant que les

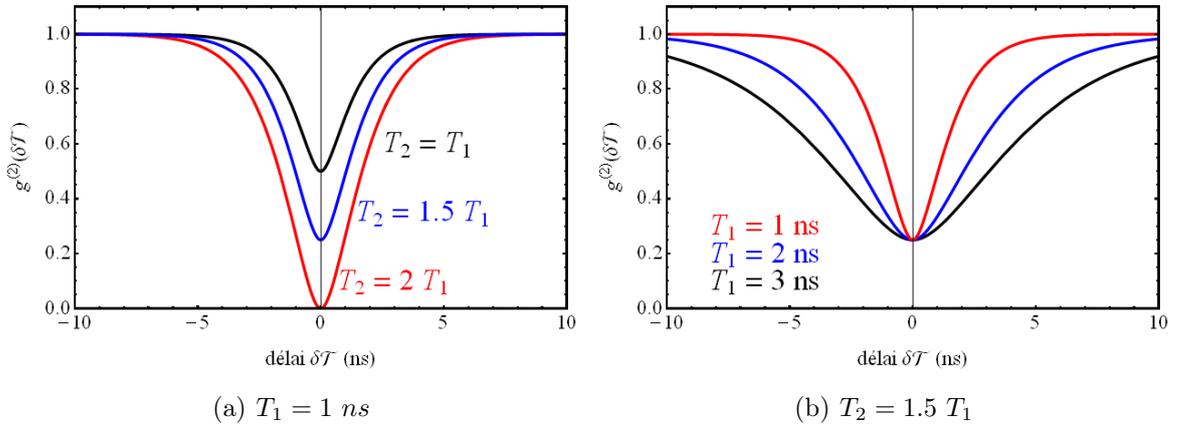


FIGURE 6.8 : (a) Évolution de la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\delta\mathcal{T})$ pour $T_1 = 1$ ns, avec différents paramètres d'efficacité de coalescence, en rouge $P = 1$, en bleu $P = 0.75$, en noir $P = 0.5$. (b) Évolution de la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\delta\mathcal{T})$ pour $P = 0.75$ et différents temps de vie, en rouge $T_1 = 1$ ns, en bleu $T_1 = 2$ ns, en noir $T_1 = 3$ ns.

deux paquets d'onde se superposent. Pour coalescer, les deux photons doivent donc arriver sur le cube séparés d'un délai $\Delta t < T_2$. En outre, pour que deux photons soient indiscernables, ceux-ci doivent être dans le même mode k , où le module du vecteur d'onde vaut $k = 2\pi\nu/c$, c'est à dire que la source dont ils sont issus doit être la plus monochromatique possible. Or, comme nous l'avons déjà démontré au quatrième chapitre, la largeur spectrale d'une raie de luminescence est inversement proportionnelle au temps de cohérence T_2 .

En 2002, Bylander et al. [252] ont réalisé le calcul de la fonction de corrélation du second ordre, pour deux photons temporellement séparés d'un délai $\delta\mathcal{T}$, interférant sur une lame semi-réfléchissante 50/50 et déterminé :

$$g^{(2)}(\delta\mathcal{T}) = 1 - \frac{T_2}{2 T_1} e^{-2|\delta\mathcal{T}|/T_2} - \frac{T_2^*}{2 T_1} (e^{-|\delta\mathcal{T}|/T_1} - e^{-2|\delta\mathcal{T}|/T_2}) \quad (6.43)$$

où, comme nous l'avons vu au chapitre 4, le taux de cohérence $1/T_2$ peut se mettre sous la forme d'une somme d'un terme radiatif $1/2T_1$ et d'un terme de déphasage pur $1/T_2^*$. À délai nul, nous obtenons donc :

$$g^{(2)}(\delta\mathcal{T} = 0) = 1 - \frac{T_2}{2 T_1} = 1 - P \quad (6.44)$$

nous permettant ainsi d'introduire le paramètre :

$$P = \frac{T_2}{2 T_1} \quad (6.45)$$

rendant compte de l'efficacité de coalescence. Ainsi la figure (6.8.a) montre l'évolution de $g^{(2)}(\delta\mathcal{T})$ pour différents paramètres P , et nous voyons pour $P = 1$ (en rouge), nous

trouvons bien $g^{(2)}(\delta\mathcal{T} = 0) = 0$, tandis que pour $P = 1/2$ (en noir), nous trouvons $g^{(2)}(\delta\mathcal{T} = 0) = 1/2$. Sur la figure (6.8.b) est tracée l'évolution de $g^{(2)}(\delta\mathcal{T})$ pour un même paramètre $P = 0.75$, pour différentes valeurs de la durée T_1 . Nous voyons que plus celle-ci est courte, plus le creux de la courbe, appelé le "Hong-Ou-Mandel dip", est étroit. Ainsi, la réalisation d'interférences à deux photons issus d'une même boîte permet de déterminer le rapport $P = T_2/2T_1$ en mesurant $g^{(2)}(\delta\mathcal{T} = 0)$, puis de déduire T_1 et T_2 grâce à la largeur du "dip".

Nous voyons donc d'après (6.44) que pour avoir une source de photons indiscernables, il faut que le rapport $P = T_2/2T_1$ tende vers 1. Il est facile de le comprendre puisque T_1 est le temps de vie de l'état excité, c'est à dire la durée au bout de laquelle est émis un photon et T_2 le temps de cohérence, c'est à dire la durée pendant laquelle le système reste dans la superposition cohérente initialement créée lors de l'excitation. Il apparaît donc clairement que pour que tous les photons issus d'une même source soient indiscernables, il faut qu'ils soient émis au bout d'un temps $T_1 < T_2$ pour que la phase du système n'ait pas eu le temps de changer entre l'excitation de celui-ci et l'émission d'un photon. C'est pour cela qu'il est important de réduire au maximum les processus de déphasage pur, pour se rapprocher de la limite radiative $T_2 = 2T_1$. En raison de la difficulté que représente le contrôle et la suppression de ces processus, qui comme nous l'avons vu dans le quatrième chapitre sont majoritairement dûs à l'interaction avec les phonons, mais aussi aux fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes, il est courant d'utiliser l'effet Purcell pour, au lieu d'augmenter le temps de cohérence T_2 , accélérer l'émission spontanée et diminuer ainsi le temps de vie T_1 . C'est ainsi qu'ont été réalisées plusieurs sources de photons indiscernables en insérant les boîtes quantiques dans des micro-cavités [253, 254, 255].

6.5.2 Réalisations expérimentales

La figure (6.9) montre la première expérience d'interférences à deux photons réalisée par Hong, Ou et Mandel en 1987, pour laquelle des paires de photons jumeaux créées par fluorescence paramétrique au moyen d'un cristal de KDP pompé par un laser ultra-violet, sont envoyées sur une lame séparatrice 50/50 (BS sur le schéma expérimental (6.9.a)), en sortie de laquelle se trouvent deux détecteurs de photons D_1 et D_2 , chacun permettant de sonder une des deux sorties de la lame et ainsi de mesurer les coïncidences entre les deux voies. Ces coïncidences sont mesurées en fonction de la position de la lame BS , qui est translatée lentement afin changer le délai entre l'arrivée des deux photons sur ses deux entrées. Les résultats ainsi obtenus sont représentés sur la figure (6.9.b), où nous voyons se dessiner un creux (le "Hong-Ou-Mandel dip") lorsque les photons arrivent simultanément sur la séparatrice et interfèrent. Signalons que dans cette expérience, la largeur du creux est

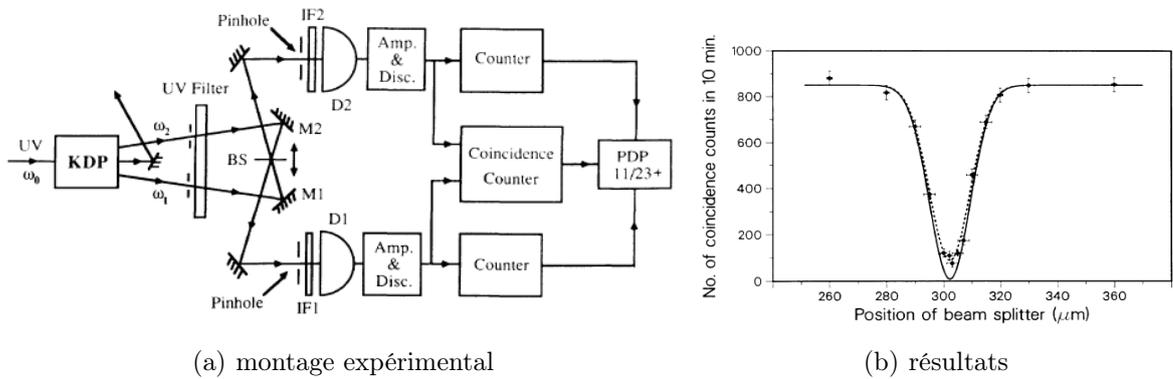


FIGURE 6.9 : Expérience de Hong-Ou-Mandel de coalescence de photons produits par fluorescence paramétrique [251].

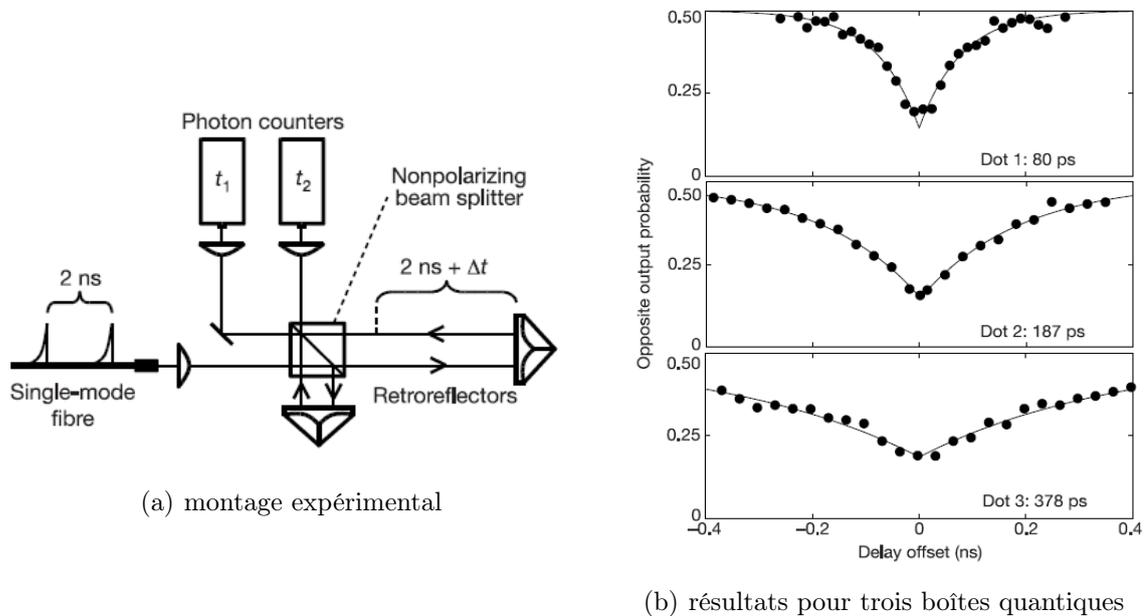


FIGURE 6.10 : Expérience de Hong-Ou-Mandel de coalescence de photons réalisée par Santori et al. avec des boîtes quantiques uniques en micro-cavité [13].

donnée par le filtrage spectral imposé expérimentalement, il est donc impossible à partir de la courbe (6.9.b) de déterminer le rapport $T_2/2T_1$.

Les figures (6.10) sont tirées de l'article [13] présentant les premières mesures d'indiscernabilité réalisées en 2001 avec des boîtes quantiques, par l'équipe de Yamamoto à l'université de Stanford. Les boîtes étudiées sont des boîtes quantiques d'InAs/GaAs insérées dans des micro-piliers afin d'augmenter le taux d'émission spontanée et ainsi se rapprocher le plus possible de la condition $P = T_1/2T_2 = 1$. L'expérience a été effectuée

en excitant une boîte quantique au moyen de deux impulsions lumineuses successives, réalisées en faisant passer le faisceau d'excitation par un interféromètre de Michelson dont l'un des bras introduit un retard de $2 ns$ d'un faisceau sur l'autre. Le schéma expérimental de la figure (6.10.a) montre le dispositif permettant de réaliser la coalescence des photons émis par la la boîte après chacune de ces impulsions. Les deux photons sont envoyés successivement dans un deuxième interféromètre, constitué d'un cube séparateur 50/50 non polarisant, d'un rétro-rélecteur monté sur un bras fixe et d'un rétro-rélecteur monté sur un bras mobile. La durée de $2 ns$ séparant les deux trains d'onde étant supérieure au temps de cohérence, il n'y a pas de coalescence lors de du premier passage par le cube et chaque photon peut être soit réfléchi avec une probabilité $1/2$ et envoyé vers le bras fixe, soit transmis avec une probabilité $1/2$ et envoyé vers le bras mobile. Signalons que seule la situation où le premier photon s'est propagé dans le bras mobile et le second dans le bras fixe s'avère intéressante car dans ce cas, les deux photons, après avoir été réfléchis à l'extrémité de chaque bras, se retrouvent simultanément sur le cube séparateur et peuvent alors coalescer. En effet, le bras mobile introduit un retard de $\Delta t + 2 ns$ par rapport au bras fixe, permettant ainsi au second photon de rattraper son retard de $2 ns$ sur le premier, tandis que la variation du paramètre Δt permet de faire faiblement varier le délai entre l'arrivée des deux photons. Deux détecteurs, placés chacun sur une des sorties du cube séparateur permettent alors de compter les photons issus dans chaque voie et ainsi réaliser un histogramme des coïncidences comme ceux de la figure (6.10.b).

La figure (6.10.b) montre les résultats expérimentaux obtenus pour trois boîtes différentes. Les points expérimentaux ont été obtenus en faisant varier le délai Δt entre l'incidence des deux photons sur le cube, et en enregistrant les coïncidences obtenues pour chaque délai, c'est à dire le nombre de fois où un photon est détecté par chaque détecteur. Comme le montre les trois courbes expérimentales, lorsque le délai Δt est nul, les deux photons sont détectés par le même détecteur, il n'y a donc pas de coïncidences, tandis qu'à mesure que le délai augmente en valeur absolue, le nombre d'évènements où un photon est détecté sur la voie 1 et l'autre est détecté sur la voie 2 croît, jusqu'à atteindre 50% lorsque $\Delta t > T_2$. En effet, dans ce cas nous revenons à un comportement classique et quatre issues sont possibles et équiprobables, les deux photons sont transmis et partent chacun dans une voie, les deux photons sont réfléchis et partent chacun dans une voie, le premier photon est réfléchi et le second transmis, ils partent tous deux dans la voie 1 et le premier photon est transmis et le second réfléchi, ils partent tous deux dans la voie 2. Il y a alors une probabilité $1/2$ de trouver un photon dans chaque voie.

D'autres groupes ont depuis réalisé ce type d'expérience, en particulier [254, 256, 257] et trouvé des résultats en bon accord avec la théorie, les temps caractéristiques mesurés au moyen de $g^{(2)}(\delta\mathcal{T})$ étant en bon accord avec les temps mesurés par des expériences

indépendantes. En particulier, en 2009 à l'Université de Stuttgart, Ates et al. [254] ont ainsi déterminé un rapport $T_2/2T_1 = 0.91$. Disposant déjà d'un interféromètre de Michelson nous permettant de réaliser deux impulsions successives, nous sommes actuellement en train de développer un deuxième interféromètre comme celui de la figure (6.10.a), pour achever la caractérisation de nos boîtes quantiques comme sources déclenchées de photons uniques indiscernables et ainsi confirmer leur intérêt pour des processus d'information quantique. Signalons que si dans l'échantillon présenté au cours de ce manuscrit un rapport $P = T_2/2T_1$ assez médiocre a souvent été constaté, des mesures préliminaires réalisées sur les nouveaux échantillons, munis de miroirs de Bragg, semblent montrer un rapport plus favorable avec $T_2 \approx T_1$.

Conclusion

Dans ce dernier chapitre, nous avons introduit la prochaine étape de notre étude, à savoir la caractérisation de nos boîtes quantiques comme sources déclenchées de photons uniques indiscernables. Nous avons pour l'instant débuté ce travail en mesurant, au moyen d'un dispositif Hanbury Brown et Twiss, la fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}(\mathcal{T})$. Des mesures réalisées sous excitation continue et impulsionnelle nous ont ainsi permis d'obtenir $0.05 < g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 0.2$, remplissant bien la condition d'unicité $g^{(2)}(\mathcal{T} = 0) < 1/2$. La seconde partie de cette caractérisation est actuellement en train d'être mise en place, avec la réalisation d'un dispositif du type Hong-Ou-Mandel permettant d'observer la coalescence de deux photons émis successivement par une même boîte, et mettre ainsi en évidence leur indiscernabilité.

Conclusion

Ce manuscrit a présenté l'étude, sous excitation non résonnante et résonnante des propriétés d'émission de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs, étudiées individuellement. Si l'étude non résonnante est facile à réaliser, les expériences à la résonance ont elles nécessité l'emploi d'une géométrie particulière, permettant de découpler spatialement les directions d'excitation et de collection de la luminescence, de manière à pouvoir observer cette dernière sans être perturbé par le laser d'excitation, très intense et se trouvant à la même énergie que les transitions étudiées. Cela est réalisé en insérant les boîtes quantiques dans des guides d'onde unidimensionnels de GaAlAs.

L'excitation résonnante des boîtes quantiques nous a permis de réaliser, au moyen d'impulsions lumineuses, des oscillations de Rabi et ainsi initialiser le système dans une superposition cohérente de son état fondamental et de son état excité. Des mesures en température ont cependant mis en évidence une forte interaction du système avec son environnement, responsable d'une perte de cohérence supplémentaire, à l'origine d'un amortissement rapide des oscillations avec la puissance d'excitation. Certaines boîtes ont par ailleurs révélé un comportement caractérisé par une relaxation supplémentaire des populations, responsable d'une diminution du temps de vie radiatif à mesure de l'augmentation de la puissance d'excitation et à l'origine d'un amortissement supplémentaire des oscillations de Rabi. L'origine physique de ce second phénomène reste à l'heure actuelle difficile à identifier.

Étant capables d'initialiser l'état du système au moyen d'une première impulsion, nous pouvons par la suite manipuler celui-ci par une seconde impulsion dont le déphasage par rapport à la première est parfaitement maîtrisé au moyen d'un interféromètre de Michelson stabilisé en phase. Ces expériences dites de "contrôle cohérent" permettent en outre d'accéder aux propriétés de durée de vie et de cohérence du système à deux niveaux.

Les temps de vie radiatif ainsi déterminés sous excitation résonnante ont en moyenne été estimés à 650 *ps*, valeur inférieure à celle mesurée hors résonance par l'étude de la décroissance temporelle de l'intensité d'émission des boîtes, de l'ordre de 950 *ps*. Plusieurs explications peuvent être envisagées pour expliquer cette accélération du temps de vie,

comme le rôle des charges environnantes ou l'effet du guide d'onde unidimensionnel. Les temps de cohérence mesurés à la résonance valent quant à eux en moyenne 300 ps et sont donc très inférieurs à leur limite théorique de $2 T_1$. Cette observation nous a permis de mettre en évidence la présence de processus de déphasage pur, responsables d'une perte de cohérence du système, sans relaxation d'énergie. Afin d'identifier l'influence des phonons dans ces processus, nous avons analysé l'évolution du temps de cohérence en fonction de la température et constaté la présence de deux cas de figure. En effet, si pour certaines boîtes, l'extrapolation à 0K des courbes obtenues correspond bien à la limite de $2 T_1$, identifiant les phonons comme seuls responsables de la perte de cohérence, il a été observé pour d'autres boîtes la présence de processus de déphasage supplémentaires, éventuellement attribuable à la présence de charges dans l'environnement de celles-ci. La compréhension et le contrôle des processus de déphasage restent encore un défi pour la réalisation de "qubit" ou de source de photons indiscernables. Afin de mieux comprendre le rôle de l'environnement électrostatique, plusieurs pistes sont envisageables, comme la réalisation de contacts électriques permettant d'appliquer un champ variable aux structures, afin de contrôler l'état de charge des boîtes quantiques.

Dans les boîtes quantiques, la brisure de symétrie de révolution autour de l'axe de croissance engendre une levée de dégénérescence des états brillants $|\pm 1\rangle$ excitoniques en deux états de structure fine $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Un interféromètre de Fabry-Pérot utilisé comme filtre interférentiel nous a permis de résoudre cette structure fine et de déterminer un splitting entre les deux états excitoniques compris entre $15 \mu eV$ et $225 \mu eV$. Cette étude a cependant mis en évidence une différence, sous excitation non résonnante, de l'intensité d'émission des deux états, dont l'étude en polarisation a de plus montré la non-orthogonalité entre les états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$. Ces deux observations nous ont amené à réaliser une étude poussée de la polarisation de la luminescence émise par les boîtes et nous avons ainsi mis en évidence un mélange de l'ordre de 15% des états de la bande de valence. D'une manière générale, nous n'avons expérimentalement observé aucune relation liant la longueur d'onde d'émission, la valeur du splitting de structure fine et les paramètres du mélange entre trous lourds et trous légers, ce qui laisse à penser que ces différents paramètres dépendent de façon complexe à la fois du potentiel de confinement et du champ des contraintes.

Ce mélange étant responsable d'une inclinaison des états $|X\rangle$ et $|Y\rangle$, sous excitation résonnante, en raison de la largeur spectrale du laser d'excitation, bien supérieure à la valeur du splitting de structure fine, ceux-ci se trouvent tous deux excités de manière cohérente et l'émission résultante est polarisée linéairement selon une direction permettant de déterminer le rapport des forces d'oscillateur, compris entre 0.2 ($\mathcal{F}_{\tilde{X}} = 5 \mathcal{F}_{\tilde{Y}}$) et 2 ($\mathcal{F}_{\tilde{Y}} = 2 \mathcal{F}_{\tilde{X}}$). L'existence d'un tel système à trois niveaux pourrait alors expliquer certaines observations faites lors de la réalisation d'oscillation de Rabi ou de certaines expériences de contrôle

cohérent. Nous avons d'ores et déjà pu constater que la prise en compte d'un troisième niveau coïncidait bien avec l'observation de courbes d'oscillations de Rabi dont l'intensité augmentait avec la puissance d'excitation. En effet, l'ajustement théorique de ces courbes expérimentales s'est révélé en bon accord avec les rapports de forces d'oscillateur obtenus par des mesures en polarisation réalisées en parallèle. Il serait donc intéressant de pousser l'étude en considérant l'influence d'un troisième niveau sur les expériences de contrôle cohérent. Par ailleurs, afin de confirmer l'influence d'un troisième niveau sur l'allure des courbes d'oscillations de Rabi, il peut être envisagé de jouer sur la polarisation d'excitation afin de n'exciter qu'un seul des états structure fine, ou au contraire de les exciter tous deux à l'identique.

Nous sommes donc à l'heure actuelle capables d'initialiser le système dans une superposition cohérente, un qubit, que nous pouvons par la suite manipuler. L'étape suivante dans la caractérisation de l'émission des boîtes quantiques est la mise en évidence de la possibilité de les utiliser comme sources à la demande de photons uniques et indiscernables. La mise en place d'un dispositif du type Hanbury Brown et Twiss nous a déjà permis de mettre en évidence la possibilité de générer des photons uniques à la demande. L'étape suivante consiste maintenant à la réalisation d'un dispositif du type Hong, Ou et Mandel, visant à démontrer l'indiscernabilité de ces photons. Un problème se pose cependant avec nos échantillons actuels en raison d'un rapport $T_2/2T_1$ encore faible, limitant cette indiscernabilité. Pour y remédier, nous travaillons actuellement à l'élaboration de nouveaux échantillons dans lesquels les boîtes sont insérées dans une cavité constituée de miroirs de Bragg, dans laquelle sont gravés les guides d'onde unidimensionnels. Les résultats préliminaires obtenus sur ce type d'échantillons semblent augurer d'un rapport $T_2/2T_1 \approx 0.55$, plus favorable et démontre également une bien meilleure efficacité d'extraction.

Lorsque l'indiscernabilité des photons émis avec un rapport $T_2/2T_1 > 0.7$ aura été démontrée, nous serons en mesure de procéder à l'intrication dite "time-bin" de deux photons issus d'une même boîte quantique et envoyés, au moyen de deux interféromètres, sur une lame semi-réfléchissante, comme cela a été proposé par Larqué et al. [258], ouvrant ainsi la voie vers l'intrication, étape indispensable à la réalisation d'opérations de calcul quantique.

L'intrication de deux boîtes quantiques indépendantes reste aussi un important défi à surmonter, dans le but de réaliser un certain nombre de transformations sur un ou plusieurs qubits, autrement appelées portes logiques quantique, telle qu'une porte "C-NOT" à deux qubits. Pour cela, il faut cependant que des efforts soient faits au niveau de la croissance, où un contrôle plus poussé de la taille et du positionnement des boîtes doit être obtenu.

Annexe A

Modèle de Kane

Les énergies propres $E_{n\mathbf{k}}$ sont solutions de l'équation :

$$\left(\hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) + \frac{2\hbar\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}}{2 m_e} \right) u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \left(E_{n\mathbf{k}} - \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2 m_e} \right) u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.1})$$

avec, au voisinage de $\mathbf{k} = \mathbf{0}$:

$$u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sum_m C_{m\mathbf{k}} u_{m\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.2})$$

Le modèle de Kane [50, 43] repose sur l'observation de forts écarts entre les énergies des différentes bandes d'un matériau, permettant de ne considérer que quatre bandes, Γ_6 , Γ_7 et Γ_8 et de réduire ainsi le système au sous espace $\{u_{1\mathbf{0}}(\mathbf{r}); \dots; u_{8\mathbf{0}}(\mathbf{r})\}$ dans lequel l'équation (A.1) s'écrit :

$$\left(\hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) + \frac{2\hbar\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}}{2 m_e} \right) \sum_{m=1}^8 C_{m\mathbf{k}} u_{m\mathbf{0}}(\mathbf{r}) = \left(E_{n\mathbf{k}} - \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2 m_e} \right) \sum_{m=1}^8 C_{m\mathbf{k}} u_{m\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \quad (\text{A.3})$$

d'où, en projetant sur $u_{m'\mathbf{0}}(\mathbf{r})$:

$$\sum_{m=1}^8 C_{m\mathbf{k}} \left[\left(E_{n,\mathbf{0}} - E_{n\mathbf{k}} + \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2 m_e} \right) \delta_{mm'} + \frac{\hbar}{m_e} \langle u_{m'\mathbf{0}}(\mathbf{r}) | \mathbf{k}\cdot\mathbf{p} | u_{m\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \rangle \right] = 0 \quad (\text{A.4})$$

Nous obtenons ainsi un système de huit équations couplées à résoudre. En prenant comme origine des énergies $E = 0$ au bas de la bande de conduction, calculons à titre d'exemple quelques éléments de matrice du hamiltonien $\hat{H}^{eff} = \hat{H}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) + \hat{W}(\mathbf{k})$. Commençons par les éléments diagonaux :

$$\langle u_{1\mathbf{0}}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{1\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \rangle = \langle u_{2\mathbf{0}}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{2\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \rangle = 0 + \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.5})$$

$$\langle u_{3\mathbf{0}}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{3\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \rangle = \langle u_{4\mathbf{0}}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{4\mathbf{0}}(\mathbf{r}) \rangle = -E_g + \frac{\hbar^2\mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.6})$$

$$\langle u_{50}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{50}(\mathbf{r}) \rangle = \langle u_{60}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{60}(\mathbf{r}) \rangle = -E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.7})$$

$$\langle u_{70}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{70}(\mathbf{r}) \rangle = \langle u_{80}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{80}(\mathbf{r}) \rangle = -E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} - \Delta_{so} \quad (\text{A.8})$$

Pour les éléments non diagonaux, le calcul est moins trivial, cherchons par exemple :

$$\begin{aligned} \langle u_{10}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{30}(\mathbf{r}) \rangle &= (-i \langle S \uparrow |) \hat{H}^{eff} \left(\frac{1}{\sqrt{6}} |(X + iY) \downarrow\rangle - \sqrt{\frac{2}{3}} |Z \uparrow\rangle \right) \\ &= (-i) \left(-\sqrt{\frac{2}{3}} \hbar k_z \right) \langle S | \frac{p_z}{m_e} | Z \rangle \\ &= -\sqrt{\frac{2}{3}} \hbar k_z P \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

où

$$P = \langle S | \frac{p_x}{m_e} | X \rangle = \langle S | \frac{p_y}{m_e} | Y \rangle = \langle S | \frac{p_z}{m_e} | Z \rangle \quad (\text{A.10})$$

est l'élément de matrice de Kane. De même, nous trouvons :

$$\begin{aligned} \langle u_{10}(\mathbf{r}) | \hat{H}^{eff} | u_{50}(\mathbf{r}) \rangle &= (-i \langle S \uparrow |) \hat{H}^{eff} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} |(X + iY) \uparrow\rangle \right) \\ &= (-i) \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \hbar (k_x \langle S | \frac{p_x}{m_e} | X \rangle + i k_y \langle S | \frac{p_y}{m_e} | Y \rangle) \right) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} \hbar k_+ P \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

où nous avons posé $k_+ = k_x + i k_y$, comme par la suite, nous poserons $k_- = k_x - i k_y$. Dans la base $\{u_{10}(\mathbf{r}), u_{30}(\mathbf{r}), u_{50}(\mathbf{r}), u_{70}(\mathbf{r}), u_{20}(\mathbf{r}), u_{40}(\mathbf{r}), u_{60}(\mathbf{r}), u_{80}(\mathbf{r})\}$, le hamiltonien effectif s'écrit ainsi sous la forme matricielle représentée dans le tableau (A.1).

Si nous nous intéressons plus particulièrement à la dispersion des bandes dans une direction particulière, par exemple la direction z (alors $k = k_z$, et $k_x = k_y = 0$), il est alors possible, en se plaçant dans la base $\{u_{10}(\mathbf{r}), u_{30}(\mathbf{r}), u_{70}(\mathbf{r}), u_{50}(\mathbf{r}), u_{60}(\mathbf{r}), u_{20}(\mathbf{r}), u_{40}(\mathbf{r}), u_{80}(\mathbf{r})\}$ de réécrire le hamiltonien du tableau (A.1) sous la forme de celui du tableau (A.2).

Pour résoudre l'équation (A.4), posons :

$$\lambda_{n\mathbf{k}} = E_{n\mathbf{k}} - \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.12})$$

et cherchons les valeurs de λ pour lesquelles le déterminant de la matrice $\hat{H}^{eff} - E_{n\mathbf{k}}\mathbb{I}$ (où \mathbb{I} est la matrice identité) est nul. Dans la base $\{u_{10}(\mathbf{r}), u_{30}(\mathbf{r}), u_{70}(\mathbf{r}), u_{50}(\mathbf{r}), u_{60}(\mathbf{r}), u_{20}(\mathbf{r}), u_{40}(\mathbf{r}), u_{80}(\mathbf{r})\}$, cette matrice peut s'écrire sous la forme :

$$\hat{H}^{eff} - E_{n\mathbf{k}}\mathbb{I} = \begin{pmatrix} \mathcal{A} & & \\ & \mathcal{B} & \\ & & \mathcal{C} \end{pmatrix} \quad (\text{A.13})$$

où

$$\mathcal{A} = \begin{pmatrix} -\lambda & -\sqrt{\frac{2}{3}}\hbar k_z P & \frac{1}{\sqrt{3}}\hbar k_z P \\ -\sqrt{\frac{2}{3}}\hbar k_z P & -E_g - \lambda & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{3}}\hbar k_z P & 0 & -E_g - \Delta_{so} - \lambda \end{pmatrix} \quad (\text{A.14})$$

est la matrice sur les états $m_J = +1/2$,

$$\mathcal{B} = \begin{pmatrix} -E_g - \lambda & 0 \\ 0 & -E_g - \lambda \end{pmatrix} \quad (\text{A.15})$$

est la matrice sur les états $m_J = \pm 3/2$ et

$$\mathcal{C} = \begin{pmatrix} -\lambda & -\sqrt{\frac{2}{3}}\hbar k_z P & \frac{1}{\sqrt{3}}\hbar k_z P \\ -\sqrt{\frac{2}{3}}\hbar k_z P & -E_g - \lambda & 0 \\ \frac{1}{\sqrt{3}}\hbar k_z P & 0 & -E_g - \Delta_{so} - \lambda \end{pmatrix} \quad (\text{A.16})$$

est la matrice sur les états $m_J = -1/2$.

Pour annuler le déterminant de la matrice (A.13), il nous faut annuler le déterminant des trois sous-matrices précédentes. Pour les matrices \mathcal{A} et \mathcal{C} , nous obtenons ainsi l'expression :

$$\lambda(E_g + \lambda)(E_g + \Delta_{so} + \lambda) = \hbar^2 k_z^2 P^2 (E_g + \frac{2}{3}\Delta_{so} + \lambda) \quad (\text{A.17})$$

avec les énergies

$$E_{n\mathbf{k}} = \lambda_{n\mathbf{k}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.18})$$

qui décrivent la dispersion des bandes Γ_6 , Γ_7 et Γ_8^{lh} (trous légers), chaque bande étant deux fois dégénérée. Et pour la matrice \mathcal{B} , nous obtenons :

$$\lambda = -E_g \quad (\text{A.19})$$

d'où

$$E_{5\mathbf{k}} = E_{6\mathbf{k}} = -E_g + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2 m_e} \quad (\text{A.20})$$

qui décrit la dispersion de la bande Γ_8^{hh} (trous lourds) deux fois dégénérée en énergie. Cependant, cette dernière expression indique une courbure de bande positive, ce qui n'est en réalité pas le cas. Il faut donc pour la bande de trous lourds tenir compte de son couplage aux bandes autres que Γ_6 , Γ_7 et Γ_8^{lh} .

Annexe B

Calcul des états propres d'une boîte quantique rectangulaire

Considérons le cas simple d'une boîte quantique rectangulaire dont les dimensions L_x , L_y et L_z sont grandes devant le paramètre de maille Δa du réseau cristallin (en effet, elles contiennent en moyenne 10^4 à 10^6 atomes) et déterminons les fonctions d'onde et les énergies propres associées aux électrons de conduction et de valence, dans le cas d'un confinement tri-dimensionnel. Comme dans le cas du puits, les électrons de conduction et de valence ont pour fonction d'onde le produit d'une fonction atomique $u_{n\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ et d'une fonction enveloppe $\chi(\mathbf{r})$, variant lentement par rapport à la partie atomique et obéissant aux équations :

$$\begin{cases} \left[\frac{(-i\hbar\nabla)^2}{2 m_c^*} + V_c(\mathbf{r}) \right] \chi_c(\mathbf{r}) = \mathcal{E}_c \chi_c(\mathbf{r}) \\ \left[\frac{(-i\hbar\nabla)^2}{-2 m_v^*} + V_v(\mathbf{r}) \right] \chi_v(\mathbf{r}) = \mathcal{E}_v \chi_v(\mathbf{r}) \end{cases} \quad (\text{B.1})$$

où m_c^* et m_v^* sont les valeurs absolues des masses effectives des électrons de conduction et de valence, et V_c et V_v leurs potentiels de confinement. Comme les porteurs de charge sont ici confinés dans les trois directions de l'espace par des barrières de potentiel infinies, il est possible de séparer les variables d'espace et d'écrire les fonctions enveloppe sous la forme générique :

$$\begin{cases} \chi_c(\mathbf{r}) = f_c(x) g_c(y) h_c(z) \\ \chi_v(\mathbf{r}) = f_v(x) g_v(y) h_v(z) \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

En posant :

$$f''(x) = \frac{d^2 f(x)}{dx^2} \quad g''(y) = \frac{d^2 g(y)}{dy^2} \quad h''(z) = \frac{d^2 h(z)}{dz^2} \quad (\text{B.3})$$

le système (B.1) se réécrit alors :

$$\left\{ \begin{array}{l} -\frac{\hbar^2}{2 m_c^*} (f_c''(x)g_c(y)h_c(z) + f_c(x)g_c''(y)h_c(z) + f_c(x)g_c(y)h_c''(z)) + V_c f_c(x)g_c(y)h_c(z) \\ \\ \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} (f_v''(x)g_v(y)h_v(z) + f_v(x)g_v''(y)h_v(z) + f_v(x)g_v(y)h_v''(z)) + V_v f_v(x)g_v(y)h_v(z) \end{array} \right. \begin{array}{l} = \mathcal{E}_c f_c(x)g_c(y)h_c(z) \\ \\ = \mathcal{E}_v f_v(x)g_v(y)h_v(z) \end{array} \quad (\text{B.4})$$

soit :

$$\left\{ \begin{array}{l} -\frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \left(\frac{f_c''(x)}{f_c(x)} + \frac{g_c''(y)}{g_c(y)} + \frac{h_c''(z)}{h_c(z)} \right) = \mathcal{E}_c - V_c \\ \\ \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \left(\frac{f_v''(x)}{f_v(x)} + \frac{g_v''(y)}{g_v(y)} + \frac{h_v''(z)}{h_v(z)} \right) = \mathcal{E}_v - V_v \end{array} \right. \quad (\text{B.5})$$

d'où :

$$\left\{ \begin{array}{l} -\frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \frac{f_c''(x)}{f_c(x)} = -\frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \frac{g_c''(y)}{g_c(y)} = -\frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \frac{h_c''(z)}{h_c(z)} = \text{constante} = E_c \\ \\ \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \frac{f_v''(x)}{f_v(x)} = \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \frac{g_v''(y)}{g_v(y)} = \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \frac{h_v''(z)}{h_v(z)} = \text{constante} = E_v \end{array} \right. \quad (\text{B.6})$$

où $E_c^* > 0$ et $E_v^* < 0$. Nous devons donc résoudre des équations différentielles du type :

$$f_c''(x) + \frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c f_c(x) = 0 \quad (\text{B.7})$$

Dans la direction x (de même que pour les directions y et z), les solutions sont du type :

$$f(x) = A \cos \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} x \right) + B \sin \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} x \right) \quad (\text{B.8})$$

Les fonctions enveloppe s'annulant en $\pm L_x/2$, $\pm L_y/2$ et $\pm L_z/2$, nous trouvons :

$$\left\{ \begin{array}{l} f_c(-L_x/2) = A \cos \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} \right) - B \sin \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} \right) = 0 \\ \\ f_c(L_x/2) = A \cos \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} \right) + B \sin \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} \right) = 0 \end{array} \right. \quad (\text{B.9})$$

d'où :

$$f_c(-L_x/2) + f_c(L_x/2) = 2 A \cos \left(\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} \right) = 0 \quad (\text{B.10})$$

donc :

$$\sqrt{\frac{2 m_c^*}{\hbar^2} E_c} \frac{L_x}{2} = (2p + 1) \frac{\pi}{2} \quad (\text{B.11})$$

avec p entier. Nous avons alors :

$$f_c(-L_x/2) = -B \sin\left((2p+1)\frac{\pi}{2}\right) = \mp B = 0 \quad (\text{B.12})$$

De même :

$$f_c(-L_x/2) - f_c(L_x/2) = 2B \sin\left(\sqrt{\frac{2m_c^* E_c}{\hbar^2}} \frac{L_x}{2}\right) = 0 \quad (\text{B.13})$$

donc :

$$\sqrt{\frac{2m_c^* E_c}{\hbar^2}} \frac{L_x}{2} = q\pi \quad (\text{B.14})$$

avec q entier. Nous avons alors :

$$f_c(-L_x/2) = A \cos(q\pi) = \pm A = 0 \quad (\text{B.15})$$

Nous pouvons donc introduire l'entier p_x tel que :

$$\sqrt{\frac{2m_c^* E_c}{\hbar^2}} \frac{L_x}{2} = p_x \frac{\pi}{2} \quad (\text{B.16})$$

de sorte que :

$$\begin{cases} \text{si } p_x \text{ est impair : } f_{p_x}^c(x) = A \cos\left(p_x \frac{\pi}{L_x} x\right) \\ \text{si } p_x \text{ est pair : } f_{p_x}^c(x) = B \sin\left(p_x \frac{\pi}{L_x} x\right) \end{cases} \quad (\text{B.17})$$

En normalisant la fonction $f_{p_x}^c(x)$, nous trouvons $A = B = \sqrt{2/L_x}$, d'où

$$\begin{cases} \text{si } p_x \text{ est impair : } f_{p_x}^c(x) = \sqrt{\frac{2}{L_x}} \cos\left(p_x \frac{\pi}{L_x} x\right) \\ \text{si } p_x \text{ est pair : } f_{p_x}^c(x) = \sqrt{\frac{2}{L_x}} \sin\left(p_x \frac{\pi}{L_x} x\right) \end{cases} \quad (\text{B.18})$$

tandis que l'énergie $E_{p_x}^c$ associée au nombre quantique p_x vaut :

$$E_{p_x}^c = \frac{\hbar^2}{2m_c^*} \left(\frac{p_x \pi}{L_x}\right)^2 \quad (\text{B.19})$$

En faisant le même raisonnement pour les composantes y et z , nous obtenons :

$$\mathcal{E}_{p_x, p_y, p_z}^c = V_c + \frac{\hbar^2}{2m_c^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x}\right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y}\right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z}\right)^2 \right] \quad (\text{B.20})$$

ainsi, pour l'état fondamental de la bande de conduction, nous avons :

$$\begin{cases} \chi_{1,1,1}^c(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{L_x}} \cos\left(\frac{\pi}{L_x} x\right) \sqrt{\frac{2}{L_y}} \cos\left(\frac{\pi}{L_y} y\right) \sqrt{\frac{2}{L_z}} \cos\left(\frac{\pi}{L_z} z\right) \\ \mathcal{E}_{1,1,1}^c = V_c + \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_c^*} \left[\frac{1}{L_x^2} + \frac{1}{L_y^2} + \frac{1}{L_z^2} \right] \end{cases} \quad (\text{B.21})$$

De même, pour la bande de valence, nous trouvons :

$$\mathcal{E}_{p_x, p_y, p_z}^v = V_v - \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \quad (\text{B.22})$$

ainsi, pour l'état fondamental de la bande de valence, nous avons :

$$\begin{cases} \chi_{1,1,1}^v(x, y, z) = \sqrt{\frac{2}{L_x}} \cos\left(\frac{\pi}{L_x} x\right) \sqrt{\frac{2}{L_y}} \cos\left(\frac{\pi}{L_y} y\right) \sqrt{\frac{2}{L_z}} \cos\left(\frac{\pi}{L_z} z\right) \\ \mathcal{E}_{1,1,1}^v = V_v - \frac{\hbar^2 \pi^2}{2 m_v^*} \left[\frac{1}{L_x^2} + \frac{1}{L_y^2} + \frac{1}{L_z^2} \right] \end{cases} \quad (\text{B.23})$$

Nous voyons donc d'après les expressions (B.20) et (B.22) que les énergies de confinement :

$$\begin{cases} E_{conf}^c = \frac{\hbar^2}{2 m_c^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \\ E_{conf}^v = \frac{\hbar^2}{2 m_v^*} \left[\left(\frac{p_x \pi}{L_x} \right)^2 + \left(\frac{p_y \pi}{L_y} \right)^2 + \left(\frac{p_z \pi}{L_z} \right)^2 \right] \end{cases} \quad (\text{B.24})$$

des électrons de conduction et de valence dépendent de leur masse effective respective et sont donc différentes.

Annexe C

Origine de l'interaction coulombienne d'échange

Considérons le cas de N électrons dans un semi-conducteur parfait, à température nulle. L'état fondamental du système s'écrit alors :

$$|0\rangle = |0 e_c^-; N e_v^-\rangle \quad (\text{C.1})$$

c'est à dire que les N électrons sont dans la bande de valence et la bande de conduction est vide, tandis que le premier état excité correspondant au passage d'un électron dans la bande de conduction s'écrit :

$$|\psi_{cv}\rangle = |1 e_c^-; (N - 1) e_v^-\rangle \quad (\text{C.2})$$

Nous pouvons traduire cela par la création d'un électron de conduction et l'annihilation d'un électron de valence, ce qui dans le formalisme de la seconde quantification se traduit par l'écriture :

$$|\psi_{cv}\rangle = a_c^\dagger a_v |0\rangle \quad (\text{C.3})$$

où les opérateurs $a_{c/v}^\dagger$ et $a_{c/v}$ sont les opérateurs création et annihilation des électrons de conduction et de valence.

Lorsque nous avons écrit dans le premier chapitre, l'énergie de l'état excité sous la forme (1.68), nous n'avons en fait considéré que les énergies \mathcal{E}_{ck_c} et \mathcal{E}_{vk_v} , respectivement de l'électron créé dans la bande de conduction et de celui détruit dans la bande de valence, sans tenir compte de la modification de l'interaction coulombienne entre ce N ème électron et les $(N - 1)$ autres électrons, présents dans la bande de valence. Il y a en réalité une répulsion coulombienne entre l'électron de conduction et les électrons de valence, correspondant à une interaction attractive entre cet électron et le trou de la bande de valence.

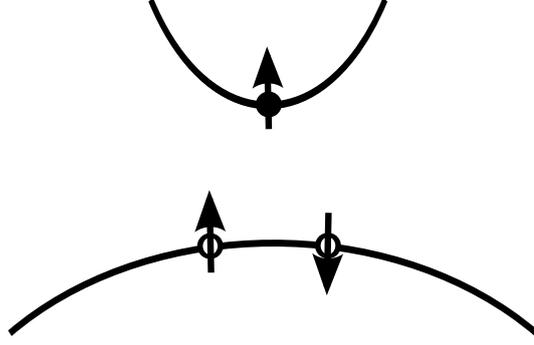


FIGURE C.1 : Interaction d'un électron de conduction de spin up avec deux électrons de valence.

Commençons par considérer deux particules identiques de charge q , l'une dans un état $|\Psi_a\rangle$ et l'autre dans un état $|\Psi_b\rangle$, l'état de l'ensemble étant noté $|\Psi_{ab}\rangle = |\Psi_a\rangle \otimes |\Psi_b\rangle$ ou $|\Psi_{ba}\rangle = |\Psi_b\rangle \otimes |\Psi_a\rangle$. L'interaction coulombienne entre ces deux particules est décrite par le hamiltonien :

$$\hat{H}_{coul} = \frac{1}{4\pi\epsilon} \frac{q^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.4})$$

où $\epsilon = \epsilon_0\epsilon_r$ est le produit de la permittivité du vide et de la constante diélectrique du matériau. Ce hamiltonien peut se décomposer en deux termes :

– un terme direct :

$$\mathcal{W} = \langle \Psi_{ab} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{ab} \rangle = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{|\Psi_a(\mathbf{r}_1)|^2 |\Psi_b(\mathbf{r}_2)|^2}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.5})$$

– un terme d'échange :

$$\mathcal{S} = \langle \Psi_{ab} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{ba} \rangle = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{\Psi_a^*(\mathbf{r}_1) \Psi_b^*(\mathbf{r}_2) \Psi_a(\mathbf{r}_2) \Psi_b(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.6})$$

ce dernier provenant de l'antisymétrisation des fonctions d'onde pour les fermions [68].

Ainsi, si nous considérons par exemple le cas simple, illustré par la figure (C.1), d'un électron de conduction de spin up, d'énergie cinétique \mathcal{E}_c , en interaction avec deux électrons de valence de spin opposé, son énergie totale (en prenant l'origine des énergies en haut de la bande de valence) est de la forme [43] :

$$\begin{aligned} E_c(\uparrow) &= E_g + \mathcal{E}_c \\ &+ \left(\frac{1}{\sqrt{2}}\right)^2 (\langle \psi_c \uparrow \psi_v \uparrow | - \langle \psi_v \uparrow \psi_c \uparrow |) \hat{H}_{coul} (|\psi_c \uparrow \psi_v \uparrow\rangle - |\psi_v \uparrow \psi_c \uparrow\rangle) \\ &+ \left(\frac{1}{\sqrt{2}}\right)^2 (\langle \psi_c \uparrow \psi_v \downarrow | - \langle \psi_v \uparrow \psi_c \downarrow |) \hat{H}_{coul} (|\psi_c \uparrow \psi_v \downarrow\rangle - |\psi_v \uparrow \psi_c \downarrow\rangle) \\ &= E_g + \mathcal{E}_c + 2\mathcal{W} + \mathcal{S} \end{aligned} \quad (\text{C.7})$$

en ayant posé :

$$\begin{cases} \mathcal{W} = \langle \psi_{cv} | \hat{H}_{coul} | \psi_{cv} \rangle \\ \mathcal{S} = \langle \psi_{cv} | \hat{H}_{coul} | \psi_{vc} \rangle \end{cases} \quad (\text{C.8})$$

Si nous considérons maintenant notre système de N électrons, le hamiltonien (C.4) s'écrit sous la forme d'une somme d'opérateurs à deux particules, impliquant chacun les électrons deux à deux [60] :

$$\hat{H}_{coul} = \frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} h_{\alpha\beta\gamma\delta} a_{\alpha}^{\dagger} a_{\beta}^{\dagger} a_{\delta} a_{\gamma} \quad (\text{C.9})$$

avec

$$h_{\alpha\beta\gamma\delta} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{\Psi_{\alpha}^*(\mathbf{r}_1) \Psi_{\beta}^*(\mathbf{r}_2) \Psi_{\gamma}(\mathbf{r}_2) \Psi_{\delta}(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.10})$$

En prenant uniquement en compte la bande de conduction et la bande de trous lourds, nous cherchons à calculer :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{v'c'} \rangle = \langle 0 | a_v^{\dagger} a_c | \left(\frac{1}{2} \sum_{\alpha, \beta, \gamma, \delta} h_{\alpha\beta\gamma\delta} a_{\alpha}^{\dagger} a_{\beta}^{\dagger} a_{\delta} a_{\gamma} \right) | a_{c'}^{\dagger} a_{v'} | 0 \rangle \quad (\text{C.11})$$

où les termes $a_{c'}^{\dagger} a_{v'}$ et $a_v^{\dagger} a_c$ créent respectivement un électron de conduction dans l'état c' et un électron de valence dans l'état v , et détruisent un électron de valence dans l'état v' et un électron de conduction dans l'état c .

Intéressons nous tout d'abord au cas $v \neq v'$, $c \neq c'$. Les termes $a_{\alpha}^{\dagger} a_{\beta}^{\dagger} a_{\delta} a_{\gamma}$ doivent alors créer un électron v' et c et détruire un électron c' et v . Seuls quatre termes de la somme (C.11) sont donc non nuls :

$$\begin{aligned} \langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{v'c'} \rangle &= \langle 0 | a_v^{\dagger} a_c | \frac{1}{2} \left(h_{cv'vc'} a_c^{\dagger} a_{v'}^{\dagger} a_{c'} a_v + h_{v'cc'v} a_{v'}^{\dagger} a_c^{\dagger} a_v a_{c'} \right. \\ &\quad \left. + h_{cv'c'v} a_c^{\dagger} a_{v'}^{\dagger} a_v a_{c'} + h_{v'cv'c'} a_{v'}^{\dagger} a_c^{\dagger} a_{c'} a_v \right) | a_{c'}^{\dagger} a_{v'} | 0 \rangle \quad (\text{C.12}) \end{aligned}$$

Les deux premiers termes correspondent à des processus directs, illustrés par la figure (C.2.a), où un électron dans l'état v est détruit pour créer un électron dans l'état v' , tandis qu'un électron dans l'état c' est détruit pour créer un électron dans l'état c . Notons que ces deux termes sont égaux puisque nous avons d'une part la règle d'anticommuation $\{a_i, a_j^{\dagger}\} = \delta_{ij}$, qui implique $a_c^{\dagger} a_{v'}^{\dagger} a_{c'} a_v = a_{v'}^{\dagger} a_c^{\dagger} a_v a_{c'}$, et d'autre part comme ils représentent le même processus, les termes $h_{cv'vc'}$ et $h_{v'cc'v}$ sont égaux et donnent la même contribution à l'élément de matrice calculé.

Les deux termes suivants, illustrés par la figure (C.2.b), correspondent à des processus d'échange, un électron dans l'état v est détruit pour créer un électron dans l'état c , tandis

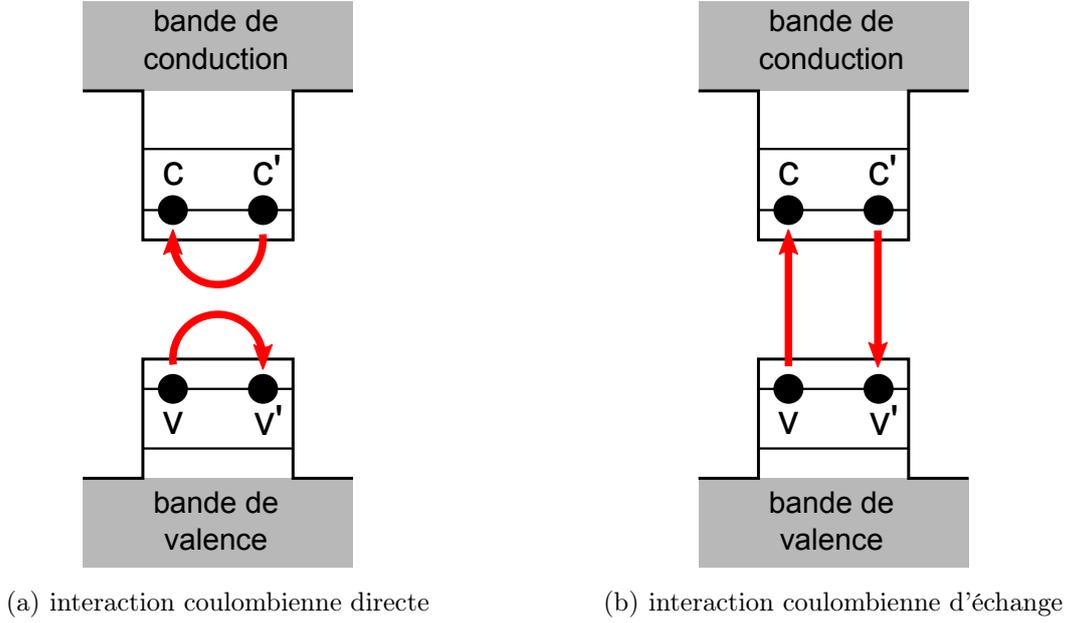


FIGURE C.2 : Schématisation des processus coulombiens a) direct et b) d'échange, dans une boîte quantique.

qu'un électron dans l'état c' est détruit pour créer un électron dans l'état v' . Ces deux termes sont eux aussi égaux entre eux puisque $a_v^\dagger a_{c'}^\dagger a_{c'} a_v = a_{c'}^\dagger a_v^\dagger a_v a_{c'}$, et $h_{cv'c'v} = h_{v'cv'c}$.

Le terme d'interaction coulombienne s'écrit donc ici :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{v'c'} \rangle = -h_{cv'v'c} + h_{cv'c'v} \quad (\text{C.13})$$

où nous retrouvons un terme direct :

$$h_{cv'v'c} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{\Psi_c^*(\mathbf{r}_1) \Psi_{v'}^*(\mathbf{r}_2) \Psi_v(\mathbf{r}_2) \Psi_{c'}(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.14})$$

et un terme d'échange :

$$h_{cv'c'v} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon} \iint d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \frac{\Psi_c^*(\mathbf{r}_1) \Psi_{v'}^*(\mathbf{r}_2) \Psi_{c'}(\mathbf{r}_2) \Psi_v(\mathbf{r}_1)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|^2} \quad (\text{C.15})$$

Les cas $v \neq v'$, $c = c'$ et $v = v'$, $c \neq c'$ ne se rencontrent pas dans le matériau massif, dans lequel en raison de l'invariance par translation, les états électroniques sont des états de Bloch et il y a conservation du vecteur d'onde. Dans ce cas, l'interaction coulombienne ne peut pas coupler deux excitons de vecteurs d'onde différents, tels que $\mathbf{k}_X = \mathbf{k}_c - \mathbf{k}_v$ et $\mathbf{k}_{X'} = \mathbf{k}_c - \mathbf{k}_{v'}$, ou $\mathbf{k}_X = \mathbf{k}_c - \mathbf{k}_v$ et $\mathbf{k}_{X'} = \mathbf{k}_{c'} - \mathbf{k}_v$. Dans les boîtes quantiques où l'invariance par translation est brisée, les nombres d'onde k ne sont plus de bons nombres quantiques et ces cas de figure peuvent alors être observés.

Commençons par le cas $v \neq v'$, $c = c'$, les termes $a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_\delta a_\gamma$ doivent alors seulement créer un électron v' et détruire un électron v . Nous retrouvons donc la somme :

$$\begin{aligned} \langle 0 | a_v^\dagger a_c | \frac{1}{2} \left(h_{cv'cv} a_c^\dagger a_{v'}^\dagger a_v a_c + h_{v'cvc} a_{v'}^\dagger a_c^\dagger a_c a_v \right. \\ \left. + h_{cv'vc} a_c^\dagger a_{v'}^\dagger a_c a_v + h_{v'ccv} a_{v'}^\dagger a_c^\dagger a_v a_c \right) | a_c^\dagger a_{v'} | 0 \rangle \end{aligned} \quad (C.16)$$

et puisque les termes $a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_\delta a_\gamma$, qui n'ont plus à créer un électron c et annihiler un électron c' peuvent de fait créer et annihiler un électron dans un état v_i quelconque, il s'ajoute donc une somme sur les états v_i tels que $v_i \neq v$, $v_i \neq v'$ et $v_i \neq c$:

$$\begin{aligned} \langle 0 | a_v^\dagger a_c | \frac{1}{2} \sum_{\substack{v_i \neq v \\ v_i \neq v' \\ v_i \neq c}} \left(h_{v_i v v_i v} a_{v_i}^\dagger a_{v'}^\dagger a_v a_{v_i} + h_{v' v_i v v_i} a_{v'}^\dagger a_{v_i}^\dagger a_{v_i} a_v \right. \\ \left. + h_{v_i v' v v_i} a_{v_i}^\dagger a_{v'}^\dagger a_{v_i} a_v + h_{v' v_i v_i v} a_{v'}^\dagger a_{v_i}^\dagger a_v a_{v_i} \right) | a_c^\dagger a_{v'} | 0 \rangle \end{aligned} \quad (C.17)$$

Nous trouvons donc :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{v'c} \rangle = h_{cv'cv} - h_{cv'vc} + \sum_{\substack{v_i \neq v \\ v_i \neq v' \\ v_i \neq c}} (h_{v_i v' v_i v} - h_{v_i v' v v_i}) \quad (C.18)$$

De même, dans le cas $v = v'$, $c \neq c'$, les termes $a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_\delta a_\gamma$ doivent seulement créer un électron c et détruire un électron c' , nous obtenons ainsi :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{vc'} \rangle = h_{cvc'v} - h_{cvc'c} + \sum_{\substack{v_i \neq v \\ v_i \neq c \\ v_i \neq c'}} (h_{c v_i c' v_i} - h_{c v_i v_i c'}) \quad (C.19)$$

Finalement, considérons le cas $v = v'$, $c = c'$, où il n'y a plus aucune contrainte sur les termes $a_\alpha^\dagger a_\beta^\dagger a_\gamma a_\delta$. S'ajoute donc au terme $h_{cvcv} - h_{cvcv}$ une double somme sur les états v_i et v_j , avec $v_i \neq v_j$ et $v_i, v_j \neq v$ puisque le terme $a_c^\dagger a_v$ a détruit l'électron v et créé l'électron c , d'où :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{vc} \rangle = h_{cvcv} - h_{cvcv} + \sum_{\substack{v_i, v_j \\ v_i > v_j \\ v_i \neq v \\ v_j \neq v}} (h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_j v_i v_i v_j}) \quad (C.20)$$

où la somme sur sur les états v_i et v_j peut se réécrire sous la forme :

$$\sum_{\substack{v_i, v_j \\ v_i > v_j \\ v_i \neq v \\ v_j \neq v}} (h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_j v_i v_i v_j}) = \sum_{\substack{v_i, v_j \\ v_i > v_j \\ v_i \neq c \\ v_j \neq c}} (h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_j v_i v_i v_j}) + \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} (h_{v_i c v_i c} - h_{v_i c v_i v_i}) - \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} (h_{v_i v v_i v} - h_{v_i v v v_i}) \quad (C.21)$$

Le premier terme est une somme sur les N états de valence, puisque nous avons inclus $v_{i/j} = v$ et exclu $v_{i/j} = c$, il s'agit donc de la somme de tous les processus coulombiens à deux électrons lorsque le système est dans son état fondamental $|0\rangle = |0 e_c^-; N e_v^- \rangle$, que nous choisissons nulle par convention d'énergie, soit :

$$\langle 0 | \hat{H}_{coul} | 0 \rangle = \sum_{\substack{v_i, v_j \\ v_i > v_j \\ v_i \neq c \\ v_j \neq c}} (h_{v_j v_i v_j v_i} - h_{v_j v_i v_i v_j}) = 0 \quad (\text{C.22})$$

Le second terme est la somme des interactions coulombiennes entre l'électron passé dans la bande de conduction et les $(N - 1)$ électrons restés dans la bande de valence, notée :

$$\mathcal{E}_c = \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} (h_{v_i c v_i c} - h_{v_i c c v_i}) \quad (\text{C.23})$$

De même, le dernier terme est la somme des interactions coulombiennes entre l'électron qui était dans l'état v lorsque le système était dans son état fondamental, avec les $(N - 1)$ autres électrons de la bande de valence, interaction qui a disparu lorsque l'électron est passé dans la bande de conduction. Notons la :

$$\mathcal{E}_v = \sum_{\substack{v_i \\ v_i \neq v \\ v_i \neq c}} (h_{v_i v v_i v} - h_{v_i v v v_i}) \quad (\text{C.24})$$

Au final, nous trouvons donc [68] :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{vc} \rangle = h_{cvcv} - h_{cvvc} + \mathcal{E}_c - \mathcal{E}_v \quad (\text{C.25})$$

où $\mathcal{E}_c - \mathcal{E}_v$ représente la différence entre l'interaction de l'électron une fois qu'il est passé dans la bande de conduction avec les $(N - 1)$ électrons restés dans la bande de valence, et l'énergie d'interaction entre cet électron et les $(N - 1)$ autres lorsque celui-ci était encore dans la bande de valence.

Dans les quatre cas de figure envisagés ici, nous pouvons distinguer d'une part le premier ($v \neq v'$, $c \neq c'$) et le dernier ($v = v'$, $c = c'$), pour lesquels l'interaction coulombienne se résume à la somme d'un terme direct ($h_{cv'vc}$ ou h_{cvcv}) et un terme d'échange ($h_{cv'c'v}$ ou h_{cvcv}) impliquant uniquement l'état de conduction occupé et l'état de valence vidé lors de la création de l'exciton, avec dans le dernier cas l'ajout d'une énergie de renormalisation $\mathcal{E}_c - \mathcal{E}_v$, et d'autre part les deux situations intermédiaires ($v \neq v'$, $c \neq c'$ et $v = v'$, $c = c'$), qui sont absentes du matériau massif et pour lesquelles il faut ajouter des termes impliquant tous les autres états de valence occupés par les électrons. Cependant, comme nous considérons pour l'instant uniquement la transition d'un électron du dernier niveau

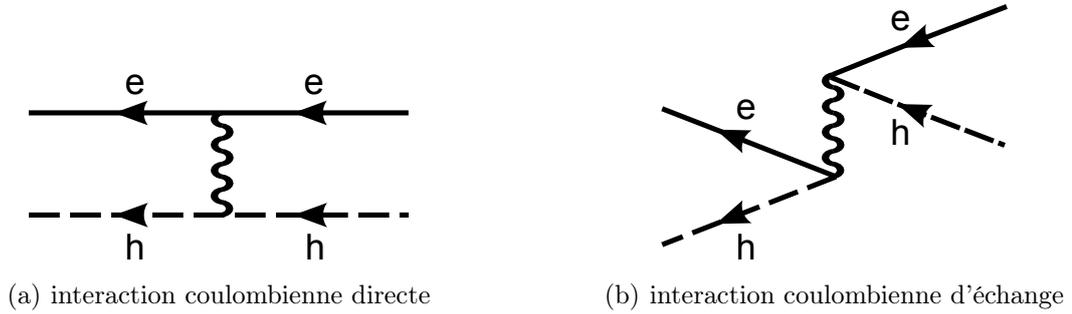


FIGURE C.3 : Représentation diagrammatique des processus coulombiens a) directs et b) d'échange, entre un électron et un trou.

de valence au premier niveau de conduction, nous pouvons négliger ces termes en raison du mauvais recouvrement des fonctions enveloppe [76] et écrire de façon générique l'interaction coulombienne sous la forme :

$$\langle \Psi_{vc} | \hat{H}_{coul} | \Psi_{v'c'} \rangle = h_{cv'c'v} - h_{cv'vc'} + \delta_{vv'} \delta_{cc'} (\mathcal{E}_c - \mathcal{E}_v) \quad (\text{C.26})$$

Nous venons de présenter l'interaction coulombienne d'échange en représentation électron de valence, pour en comprendre l'origine. Il est cependant courant en physique des semi-conducteurs de considérer l'interaction d'échange électron - trou, tout en se rappelant que l'électron et le trou ne sont pas deux fermions indiscernables et que nous parlons d'interaction d'échange car il s'agit en réalité de l'interaction d'échange entre deux électrons, l'un dans l'état ψ_c et l'autre, fictif, dans l'état ψ_v . Une représentation diagrammatique de l'interaction coulombienne d'échange et de l'interaction coulombienne directe entre un électron et un trou est représentée sur la figure (C.3).

Annexe D

Résolution des équations de Bloch optiques sous excitation résonnante

Pour résoudre les équations de Bloch optiques, nous avons introduit au troisième chapitre les trois composantes du vecteur de Bloch :

$$\begin{cases} u(t) = \frac{1}{2} (\hat{\sigma}_{01}(t) + \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ v(t) = \frac{1}{2i} (\hat{\sigma}_{01}(t) - \hat{\sigma}_{10}(t)) \\ w(t) = \frac{1}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) \end{cases} \quad (\text{D.1})$$

Les équations de Bloch optique se réécrivent alors :

$$\begin{cases} \dot{u}(t) = \delta_L v(t) - \frac{u(t)}{T_2} \\ \dot{v}(t) = -\delta_L u(t) + \Omega_R w(t) - \frac{v(t)}{T_2} \\ \dot{w}(t) = -\Omega_R v(t) - \frac{w(t) + 1/2}{T_1} \end{cases} \quad (\text{D.2})$$

et se résolvent en déterminant les solutions stationnaires :

$$\begin{cases} u_S = -\frac{1}{2} \frac{T_2^2 \delta_L \Omega_R}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \\ v_S = -\frac{1}{2} \frac{T_2 \Omega_R}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \\ w_S = -\frac{1}{2} \frac{\delta_L^2 T_2^2 + 1}{\delta_L^2 T_2^2 + \Omega_R^2 T_1 T_2 + 1} \end{cases} \quad (\text{D.3})$$

auxquelles s'ajoutent des solutions transitoires que nous allons déterminer.

Considérons que le système à deux niveaux est initialement dans son état fondamental :

$$\rho(t=0) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{D.4})$$

et plaçons nous dans le cadre d'une excitation résonnante :

$$\delta_L = 0 \quad (\text{D.5})$$

La première équation de Bloch devient alors :

$$\dot{u}(t) = -\frac{u(t)}{T_2} \quad (\text{D.6})$$

ce qui en tenant compte des conditions initiales donne la solution :

$$u(t) = u(0) = 0 \quad (\text{D.7})$$

L'évolution de l'état du système est donc décrite par les deux équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} \dot{v}(t) = \Omega_R w(t) - \frac{v(t)}{T_2} \\ \dot{w}(t) = -\Omega_R v(t) - \frac{w(t) + 1/2}{T_1} \end{cases} \quad (\text{D.8})$$

Pour résoudre ce système, commençons par dériver ces deux équations par rapport au temps :

$$\begin{cases} \ddot{v}(t) = \Omega_R \dot{w}(t) - \frac{\dot{v}(t)}{T_2} \\ \ddot{w}(t) = -\Omega_R \dot{v}(t) - \frac{\dot{w}(t)}{T_1} \end{cases} \quad (\text{D.9})$$

puis substituons, dans la première $\dot{w}(t)$, et dans la seconde $\dot{v}(t)$ par les expressions (D.8) :

$$\begin{cases} \ddot{v}(t) = -\Omega_R^2 v(t) - \frac{\Omega_R}{T_1} (w(t) + \frac{1}{2}) - \frac{\dot{v}(t)}{T_2} \\ \ddot{w}(t) = -\Omega_R^2 \dot{w}(t) + \frac{\Omega_R}{T_2} v(t) - \frac{\dot{w}(t)}{T_1} \end{cases} \quad (\text{D.10})$$

Remplaçons, dans la première équation $\Omega_R w(t)$ au moyen de la première équation du système (D.8), et dans la seconde $\Omega_R v(t)$ au moyen de la seconde équation du système (D.8), pour parvenir à :

$$\begin{cases} \ddot{v}(t) = -\Omega_R^2 v(t) - \frac{\dot{v}(t)}{T_1} - \frac{v(t)}{T_1 T_2} - \frac{\Omega_R}{2T_1} - \frac{\dot{v}(t)}{T_2} \\ \ddot{w}(t) = -\Omega_R^2 \dot{w}(t) - \frac{\dot{w}(t)}{T_2} - \frac{w(t) + 1/2}{T_1 T_2} - \frac{\dot{w}(t)}{T_1} \end{cases} \quad (\text{D.11})$$

Nous obtenons ainsi un système composé de deux équations différentielles du second ordre, indépendantes l'une de l'autre :

$$\begin{cases} \ddot{v}(t) + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \dot{v}(t) + \left(\Omega_R^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) v(t) = -\frac{\Omega_R}{2T_1} \\ \ddot{w}(t) + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \dot{w}(t) + \left(\Omega_R^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) w(t) = -\frac{1}{2T_1 T_2} \end{cases} \quad (\text{D.12})$$

qui ont pour solution générale la somme des solutions $\tilde{v}(t)$ et $\tilde{w}(t)$ des équations homogènes associées aux deux équations différentielles :

$$\begin{cases} \ddot{\tilde{v}}(t) + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \dot{\tilde{v}}(t) + \left(\Omega_R^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) \tilde{v}(t) = 0 \\ \ddot{\tilde{w}}(t) + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \dot{\tilde{w}}(t) + \left(\Omega_R^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) \tilde{w}(t) = 0 \end{cases} \quad (\text{D.13})$$

et des solutions particulières v_S et w_S trouvée dans la partie 3.4.1. Pour trouver la solution des équations différentielles du second ordre à coefficient constant (D.13), il faut déterminer les racines r_{\pm} de l'équation caractéristique associée :

$$r^2 + \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) r + \left(\Omega_R^2 + \frac{1}{T_1 T_2}\right) = 0 \quad (\text{D.14})$$

qui sont :

$$r_{\pm} = -\frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \pm \sqrt{\frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)^2 - \Omega_R^2} \quad (\text{D.15})$$

Si nous considérons uniquement le cas d'un couplage fort entre le champ incident et le système, c'est à dire si l'amplitude du champ incident est suffisamment intense pour que $\Omega_R > \frac{1}{2} \left| \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right|$, la quantité sous le radical du second terme de (D.15) est négative et les racines r_{\pm} peuvent s'écrire sous la forme :

$$r_{\pm} = -\gamma \pm i\Omega \quad (\text{D.16})$$

où :

$$\begin{cases} \gamma = -\frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right) \\ \Omega = \sqrt{\Omega_R^2 - \frac{1}{4} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right)^2} \end{cases} \quad (\text{D.17})$$

La solution générale des équations différentielles sans second membre (D.13) prend donc la forme d'une combinaison linéaire d'exponentielles imaginaires $e^{\pm i\Omega t}$, c'est à dire de sinusoides de pulsation Ω , amorties par une exponentielle réelle $e^{-\gamma t}$, la constante d'amortissement γ étant la moyenne des constantes d'amortissement $1/T_1$ et $1/T_2$, respectivement des variables $w(t)$ et $v(t)$:

$$\begin{cases} \tilde{v}(t) = Ae^{r_+ t} + Be^{r_- t} = (Ae^{i\Omega t} + Be^{-i\Omega t})e^{-\gamma t} \\ \tilde{w}(t) = A'e^{r_+ t} + B'e^{r_- t} = (A'e^{i\Omega t} + B'e^{-i\Omega t})e^{-\gamma t} \end{cases} \quad (\text{D.18})$$

où A , B , A' et B' sont des constantes déterminées à partir des conditions initiales issues de (D.4) :

$$\begin{cases} v(0) = 0 \\ w(0) = -\frac{1}{2} \end{cases} \quad (\text{D.19})$$

qui d'après les équation de Bloch (D.8) impliquent :

$$\begin{cases} \dot{v}(0) = -\Omega_R w(0) - \frac{v(0)}{T_2} = \frac{\Omega_R}{2} \\ \dot{w}(0) = \Omega_R v(0) - \frac{w(0) + 1/2}{T_1} = 0 \end{cases} \quad (\text{D.20})$$

La solution générale des équations de Bloch (D.8) avec second membre prennent quant à elles la forme :

$$\begin{cases} v(t) = Ae^{r_+t} + Be^{r_-t} + v_S \\ w(t) = A'e^{r_+t} + B'e^{r_-t} + w_S \end{cases} \quad (\text{D.21})$$

où v_S et w_S sont les solutions stationnaires données par (3.82). L'utilisation des conditions initiales (D.20) nous permet d'obtenir les relations :

$$\begin{cases} Ar_+ + Br_- = \frac{\Omega_R}{2} \Rightarrow B = -A\frac{r_+}{r_-} + \frac{\Omega_R}{2r_-} \\ A'r_+ + B'r_- = 0 \Rightarrow B' = -A'\frac{r_+}{r_-} \end{cases} \quad (\text{D.22})$$

et les solutions générales (D.21) se réécrivent :

$$\begin{cases} v(t) = A \left(e^{r_+t} - \frac{r_+}{r_-} e^{r_-t} \right) + \frac{\Omega_R}{2r_-} e^{r_-t} + v_S \\ w(t) = A' \left(e^{r_+t} - \frac{r_+}{r_-} e^{r_-t} \right) + w_S \end{cases} \quad (\text{D.23})$$

En utilisant maintenant les conditions initiales (D.19), il est possible de déterminer l'expression des constantes A et A' :

$$\begin{cases} A(1 - \frac{r_+}{r_-}) + \frac{\Omega_R}{2r_-} + v_S = 0 \Rightarrow A = (v_S + \frac{\Omega_R}{2r_-}) \frac{r_-}{(r_+ - r_-)} \\ A'(1 - \frac{r_+}{r_-}) + w_S = -\frac{1}{2} \Rightarrow A' = (w_S + \frac{1}{2}) \frac{r_-}{(r_+ - r_-)} \end{cases} \quad (\text{D.24})$$

et en remplaçant ces expressions dans (D.23), nous obtenons :

$$\begin{aligned} v(t) &= v_S + \left(v_S + \frac{\Omega_R}{2r_-} \right) \frac{r_- e^{r_+t} - r_+ e^{r_-t}}{r_+ - r_-} + \frac{\Omega_R}{2r_-} \\ &= v_S + v_S \frac{r_- e^{r_+t} - r_+ e^{r_-t}}{r_+ - r_-} + \frac{\Omega_R}{2} \frac{e^{r_+t} - e^{r_-t}}{r_+ - r_-} \end{aligned} \quad (\text{D.25})$$

et

$$w(t) = w_S + (w_S + \frac{1}{2}) \frac{r_- e^{r_+ t} - r_+ e^{r_- t}}{r_+ - r_-} \quad (\text{D.26})$$

avec r_{\pm} donnés par (D.16), d'où :

$$\begin{cases} v(t) = v_S + v_S \left[\frac{-\gamma (e^{i\Omega t} - e^{-i\Omega t}) - i \Omega (e^{i\Omega t} - e^{-i\Omega t})}{2i \Omega} \right] e^{-\gamma t} + \frac{\Omega_R}{2} \left[\frac{e^{i\Omega t} - e^{-i\Omega t}}{2i \Omega} \right] e^{-\gamma t} \\ w(t) = w_S + (w_S + \frac{1}{2}) \left[\frac{-\gamma (e^{i\Omega t} - e^{-i\Omega t}) - i \Omega (e^{i\Omega t} - e^{-i\Omega t})}{2i \Omega} \right] e^{-\gamma t} \end{cases} \quad (\text{D.27})$$

La solution générale des équations de Bloch pour un système à deux niveaux, initialement dans l'état (D.4) et soumis à un rayonnement résonnant avec la transition entre les niveaux est donc :

$$\begin{cases} u(t) = 0 \\ v(t) = v_S - \left[v_S \cos(\Omega t) + \frac{1}{\Omega} \left(\gamma v_S + \frac{\Omega_R}{2} \right) \sin(\Omega t) \right] e^{-\gamma t} \\ w(t) = w_S - (w_S + \frac{1}{2}) \left[\cos(\Omega t) + \frac{\gamma}{\Omega} \sin(\Omega t) \right] e^{-\gamma t} \end{cases} \quad (\text{D.28})$$

Annexe E

Couplage excitons - phonons acoustiques

Le calcul suivant est inspiré de la référence [128].

Considérons une boîte quantique en interaction avec un champ de pulsation ω_L . Le hamiltonien de l'ensemble {boîte + champ} peut s'écrire sous la forme :

$$\hat{H}_A = \hbar \delta_L |1\rangle \langle 1| + \frac{\hbar \Omega_R(t)}{2} (|0\rangle \langle 1| + |1\rangle \langle 0|) \quad (\text{E.1})$$

soit, en utilisant les matrices de Pauli et la matrice identité \mathbb{I} [128] :

$$\hat{H}_A = \frac{\hbar \delta_L}{2} (\mathbb{I} + \sigma_z) + \frac{\hbar \Omega_R(t)}{2} \sigma_x \quad (\text{E.2})$$

Le système considéré est cependant également en interaction avec les phonons acoustiques du réseau environnant (GaAs), de vecteur d'onde \mathbf{q} et de pulsation $\omega_{\mathbf{q}} = c_s q$, où c_s est la vitesse du son dans le matériau. Seul les phonons acoustiques sont pris en compte car les phonons optiques ont une énergie (36 meV dans le GaAs) trop grande devant $k_B T$. Le bain de phonons acoustiques est caractérisé par le hamiltonien [129] :

$$\hat{H}_B = \sum_{\mathbf{q}} \hbar \omega_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}} \quad (\text{E.3})$$

où $b_{\mathbf{q}}^\dagger$ et $b_{\mathbf{q}}$ sont les opérateurs de création et d'annihilation de phonons \mathbf{q} . Le couplage d'un exciton localisé avec ce bain de phonons peut alors s'écrire sous la forme [259] :

$$\begin{aligned} \hat{H}_C &= \hbar |1\rangle \langle 1| \sum_{\mathbf{q}} (g_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger + g_{\mathbf{q}}^* b_{\mathbf{q}}) \\ &= \frac{\hbar}{2} (\mathbb{I} + \sigma_z) \sum_{\mathbf{q}} (g_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger + g_{\mathbf{q}}^* b_{\mathbf{q}}) \\ &= \hbar \hat{S} \hat{R} \end{aligned} \quad (\text{E.4})$$

où nous avons posé :

$$\begin{cases} \hat{S} = \frac{(\mathbb{I} + \sigma_z)}{2} \\ \hat{R} = \sum_{\mathbf{q}} (g_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger + g_{\mathbf{q}}^* b_{\mathbf{q}}) \end{cases} \quad (\text{E.5})$$

avec, d'après [259] :

$$g_{\mathbf{q}} = \frac{q}{\sqrt{2\hbar\mu\omega_{\mathbf{q}}\mathcal{V}}} (\mathcal{D}_e \mathcal{P}[\psi_e(\mathbf{r})] - \mathcal{D}_h \mathcal{P}[\psi_h(\mathbf{r})]) \quad (\text{E.6})$$

où μ est la densité massique du matériau, \mathcal{V} son volume élémentaire, \mathcal{D}_e et \mathcal{D}_h les potentiels de déformation [260], respectivement des électrons et des trous, dans le matériau massif, et $\mathcal{P}[\psi_e(\mathbf{r})]$ et $\mathcal{P}[\psi_h(\mathbf{r})]$ le facteur de forme de la fonction d'onde des électrons et des trous, qui sur les échelles de distance considérées pourra être approximé à l'unité. Le hamiltonien de l'ensemble {phonons + boîte + champ} s'écrit alors :

$$\hat{H} = \hat{H}_A + \hat{H}_B + \hat{H}_C \quad (\text{E.7})$$

Plaçons nous maintenant en représentation d'interaction [124, 261] et considérons le hamiltonien :

$$\hat{H}_I(t) = \hbar \hat{S}_I(t) \hat{R}_I(t) \quad (\text{E.8})$$

comme une perturbation du hamiltonien $\hat{H}_A + \hat{H}_B$ caractérisant le système sans interaction entre l'ensemble {boîte + champ} et les phonons. Dans cette représentation, l'opérateur \hat{R} devient :

$$\hat{R}_I(t) = \sum_{\mathbf{q}} (g_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}}^\dagger e^{i\omega_{\mathbf{q}}t} + g_{\mathbf{q}}^* b_{\mathbf{q}} e^{-i\omega_{\mathbf{q}}t}) \quad (\text{E.9})$$

et sous excitation résonnante ($\delta_L = 0$), l'opérateur \hat{S} devient :

$$\hat{S}_I(t) = \frac{1}{2} \left(\mathbb{I} - e^{-i \int_0^t \Omega_R(t') dt'} |-\rangle \langle +| - e^{i \int_0^t \Omega_R(t') dt'} |+\rangle \langle -| \right) \quad (\text{E.10})$$

où nous avons introduit les états propres de \hat{H}_A : $|+\rangle = (|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$ et $|-\rangle = (|0\rangle - |1\rangle)/\sqrt{2}$. Pour simplifier, supposons pour l'instant que le champ incident varie beaucoup plus lentement que le temps de relaxation du bain de phonons (même si cette hypothèse est discutable dans notre cas où les impulsions sont de durée $\tau = 2$ ps et les phonons relaxent en moyenne au bout de 0.8 ps [167]), et qu'il peut de fait être considéré comme constant. Nous obtenons ainsi l'expression :

$$\hat{S}_I(t) = \frac{1}{2} \left(\mathbb{I} - e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| - e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \right) \quad (\text{E.11})$$

Si nous appelons $\rho_{tot}(t)$ la matrice densité du système {phonons + boîte + champ}, l'équation de Liouville - Von Neumann nous donne pour la matrice densité réduite $\rho(t)$ (matrice densité de l'exciton) l'équation :

$$\dot{\rho}(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t dt' \text{Tr}_{ph} ([H_I(t), [H_I(t'), \rho_{tot}(t')]]) \quad (\text{E.12})$$

où Tr_{ph} désigne la trace partielle sur les états propres du bain de phonons. En faisant l'approximation de Born-Markov [262] :

- couplage faible (Born) entre le système {boîte + champ} et les phonons
 \Rightarrow la matrice densité de l'ensemble peut alors se factoriser sous la forme :

$$\rho_{tot}(t') = \rho(t') \otimes \rho_{ph} \quad (\text{E.13})$$

où ρ_{ph} décrit le bain de phonons à l'équilibre thermique.

- mémoire courte (Markov) car l'échelle de temps sur laquelle varie le système excitonique (de l'ordre de 500 ps) est très supérieur au temps de relaxation des phonons (de l'ordre de 1 ps)
 \Rightarrow nous pouvons remplacer $\rho(t')$ par $\rho(t)$ et étendre la borne supérieure de l'intégrale de (E.12) vers l'infini.

En posant par ailleurs $\tau = t - t'$, l'équation (E.12) se réécrit alors [123] :

$$\dot{\rho}(t) = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^\infty d\tau \text{Tr}_{ph} ([H_I(t), [H_I(t - \tau), \rho(t) \otimes \rho_{ph}]]) \quad (\text{E.14})$$

L'opérateur \hat{R}_I n'agissant que sur les phonons et \hat{S}_I n'agissant que sur les excitons (E.13) nous permet de trouver :

$$[H_I(t - \tau), \rho(t) \otimes \rho_{ph}] = \hbar \left(\hat{S}_I(t - \tau) \rho(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rho_{ph} - \rho(t) \hat{S}_I(t - \tau) \rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau) \right) \quad (\text{E.15})$$

et

$$\begin{aligned} [H_I(t), [H_I(t - \tau), \rho(t) \otimes \rho_{ph}]] &= \hbar^2 \left\{ \hat{S}_I(t) \hat{S}_I(t - \tau) \rho(t) \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rho_{ph} \right. \\ &\quad - \hat{S}_I(t) \rho(t) \hat{S}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t) \rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau) \\ &\quad - \hat{S}_I(t - \tau) \rho(t) \hat{S}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rho_{ph} \hat{R}_I(t) \\ &\quad \left. + \rho(t) \hat{S}_I(t - \tau) \hat{S}_I(t) \rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t) \right\} \quad (\text{E.16}) \end{aligned}$$

En raison de la propriété de cyclicité de la trace d'une matrice :

$$\begin{cases} \text{Tr}_{ph}(\hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rho_{ph}) = \text{Tr}_{ph}(\hat{R}_I(t - \tau) \rho_{ph} \hat{R}_I(t)) = \text{Tr}_{ph}(\rho_{ph} \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau)) \\ \text{Tr}_{ph}(\hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t) \rho_{ph}) = \text{Tr}_{ph}(\hat{R}_I(t) \rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau)) = \text{Tr}_{ph}(\rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t)) \end{cases} \quad (\text{E.17})$$

et en définissant les fonctions de corrélation des phonons :

$$\begin{cases} \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle = \text{Tr}_{ph}(\rho_{ph} \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau)) \\ \langle \hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t) \rangle = \text{Tr}_{ph}(\rho_{ph} \hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t)) \end{cases} \quad (\text{E.18})$$

nous obtenons :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}(t) = & \int_0^\infty d\tau \left\{ \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle [\hat{S}_I(t - \tau) \rho(t) \hat{S}_I(t) - \hat{S}_I(t) \hat{S}_I(t - \tau) \rho(t)] \right. \\ & \left. + \langle \hat{R}_I(t - \tau) \hat{R}_I(t) \rangle [\hat{S}_I(t) \rho(t) \hat{S}_I(t - \tau) - \rho(t) \hat{S}_I(t - \tau) \hat{S}_I(t)] \right\} \end{aligned} \quad (\text{E.19})$$

où nous remarquons que le second terme est le conjugué hermitique (*c.h.*) du premier, d'où :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}(t) = & \left\{ \int_0^\infty d\tau \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle \hat{S}_I(t - \tau) \right\} \rho(t) \hat{S}_I(t) \\ & - \hat{S}_I(t) \left\{ \int_0^\infty d\tau \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle \hat{S}_I(t - \tau) \right\} \rho(t) + c.h. \end{aligned} \quad (\text{E.20})$$

En supposant le bain de phonons à l'équilibre thermique, nous avons :

$$\begin{cases} \langle b_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}'}^\dagger \rangle = \delta_{\mathbf{q}\mathbf{q}'} (\mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) + 1) \\ \langle b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}'} \rangle = \delta_{\mathbf{q}\mathbf{q}'} \mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) \\ \langle b_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}'} \rangle = \langle b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}'}^\dagger \rangle = 0 \end{cases} \quad (\text{E.21})$$

où $\mathcal{N}(\omega) = 1/(e^{\hbar\omega/k_B T} - 1)$ est la fonction de distribution de Bose - Einstein. Le calcul des fonctions d'autocorrélation (E.18) s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle &= \sum_{\mathbf{q}} \left\{ (g_{\mathbf{q}})^2 \langle b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}'}^\dagger \rangle e^{i\omega_{\mathbf{q}}(2t - \tau)} + (g_{\mathbf{q}}^\dagger)^2 \langle b_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}'} \rangle e^{-i\omega_{\mathbf{q}}(2t - \tau)} \right. \\ &\quad \left. + |g_{\mathbf{q}}|^2 \langle b_{\mathbf{q}}^\dagger b_{\mathbf{q}'} \rangle e^{i\omega_{\mathbf{q}}\tau} + |g_{\mathbf{q}}|^2 \langle b_{\mathbf{q}} b_{\mathbf{q}'}^\dagger \rangle e^{-i\omega_{\mathbf{q}}\tau} \right\} \\ &= \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \left\{ (\mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) + 1) e^{-i\omega_{\mathbf{q}}\tau} + \mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) e^{i\omega_{\mathbf{q}}\tau} \right\} \end{aligned} \quad (\text{E.22})$$

d'où :

$$\begin{aligned} & \int_0^\infty d\tau \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t - \tau) \rangle \hat{S}_I(t - \tau) \\ = & \frac{1}{2} \int_0^\infty d\tau \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \left\{ [(\mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) + 1) e^{-i\omega_{\mathbf{q}}\tau} + \mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) e^{i\omega_{\mathbf{q}}\tau}] I \right. \\ & - [(\mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) + 1) e^{-i(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R)\tau} + \mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) e^{i(\omega_{\mathbf{q}} + \Omega_R)\tau}] e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \\ & \left. - [(\mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) + 1) e^{-i(\omega_{\mathbf{q}} + \Omega_R)\tau} + \mathcal{N}(\omega_{\mathbf{q}}) e^{i(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R)\tau}] e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \right\} \end{aligned} \quad (\text{E.23})$$

Pour effectuer ce calcul rappelons que :

$$\int_0^\infty d\tau e^{\pm i\epsilon\tau} = \pi \delta(\epsilon) \pm i \mathcal{P}\mathcal{P}\left(\frac{1}{\epsilon}\right) \quad (\text{E.24})$$

où \mathcal{PP} désigne la partie principale de la fonction, que nous ne considérerons pas ici car elle n'entraîne qu'une renormalisation du hamiltonien du système et ne contribue pas directement au déphasage [123], d'où :

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty d\tau \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t-\tau) \rangle \hat{S}_I(t-\tau) \\
= & \frac{\pi}{2} \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \{ \delta(\omega_{\mathbf{q}}) [(\mathcal{N}(0) + 1) + \mathcal{N}(0)] I \\
& - [(\mathcal{N}(\Omega_R) + 1)\delta(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R) + \mathcal{N}(\Omega_R)\delta(\omega_{\mathbf{q}} + \Omega_R)] e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \\
& - [(\mathcal{N}(\Omega_R) + 1)\delta(\omega_{\mathbf{q}} + \Omega_R) + \mathcal{N}(\Omega_R)\delta(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R)] e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \} \quad (\text{E.25})
\end{aligned}$$

Comme de plus, la densité spectrale de phonons est nulle pour $\omega_{\mathbf{q}} = 0$ et que par ailleurs $\omega_{\mathbf{q}} + \Omega_R \neq 0$, seuls restent les termes :

$$\begin{aligned}
& \int_0^\infty d\tau \langle \hat{R}_I(t) \hat{R}_I(t-\tau) \rangle \hat{S}_I(t-\tau) \\
= & -\frac{\pi}{2} \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R) \{ (\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \\
& + \mathcal{N}(\Omega_R) e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \} \quad (\text{E.26})
\end{aligned}$$

d'où :

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}(t) &= -\frac{\pi}{2} \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R) \left\{ (\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) \left[e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \rho(t) \hat{S}_I(t) - \hat{S}_I(t) e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \rho(t) \right] \right. \\
& \quad \left. + \mathcal{N}(\Omega_R) \left[e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \rho(t) \hat{S}_I(t) - \hat{S}_I(t) e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \rho(t) \right] + c.h. \right\} \\
&= \frac{\pi}{2} \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \delta(\omega_{\mathbf{q}} - \Omega_R) \left\{ (\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) \left[\hat{S}_I(t), e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \rho(t) \right] \right. \\
& \quad \left. + \mathcal{N}(\Omega_R) \left[\hat{S}_I(t), e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \rho(t) \right] + c.h. \right\} \quad (\text{E.27})
\end{aligned}$$

où nous reconnaissons la densité spectrale des phonons :

$$\begin{aligned}
J(\omega) &= \sum_{\mathbf{q}} |g_{\mathbf{q}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\mathbf{q}}) = \frac{\mathcal{V}}{(2\pi)^3} \int d^3q |g_{\mathbf{q}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\mathbf{q}}) \\
&= \frac{(\mathcal{D}_e - \mathcal{D}_h)^2}{4\pi^2 \hbar \mu c_s^5} \omega^3 \quad (\text{E.28})
\end{aligned}$$

Repassons maintenant en représentation de Schrödinger et dans la base des états

propres excitoniques :

$$\begin{cases} \dot{\rho}(t) \rightarrow \dot{\rho}(t) + i\frac{\Omega_R}{2}[\sigma_x, \rho(t)] \\ \hat{S}_I(t) \rightarrow \frac{\mathbb{I} + \sigma_z}{2} \\ e^{i\Omega_R t} |+\rangle \langle -| \rightarrow -\frac{\sigma_z - i\sigma_y}{2} \\ e^{-i\Omega_R t} |-\rangle \langle +| \rightarrow -\frac{\sigma_z + i\sigma_y}{2} \end{cases} \quad (\text{E.29})$$

soit :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}(t) &= \frac{\pi}{2} J(\Omega_R) \left\{ (\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) \left[\frac{\mathbb{I} + \sigma_z}{2}, -\frac{\sigma_z + i\sigma_y}{2} \rho(t) \right] \right. \\ &\quad \left. + \mathcal{N}(\Omega_R) \left[\frac{\mathbb{I} + \sigma_z}{2}, -\frac{\sigma_z - i\sigma_y}{2} \rho(t) \right] + c.h. \right\} + i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \\ &= -\frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \{ (\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) ([\sigma_z, \sigma_z \rho(t)] + i[\sigma_z, \sigma_y \rho(t)]) \\ &\quad + \mathcal{N}(\Omega_R) ([\sigma_z, \sigma_z \rho(t)] - i[\sigma_z, \sigma_y \rho(t)]) + c.h. \} + i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \\ &= -\frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \{ (2\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) [\sigma_z, \sigma_z \rho(t)] + i[\sigma_z, \sigma_y \rho(t)] + c.h. \} + i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \\ &= -\frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \{ (2\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) ([\sigma_z, \sigma_z \rho(t)] - [\sigma_z, \rho(t) \sigma_z]) \\ &\quad + i([\sigma_z, \sigma_y \rho(t)] + [\sigma_z, \sigma_y \rho(t)]) \} + i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \\ &= -\frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \{ (2\mathcal{N}(\Omega_R) + 1) [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] + i[\sigma_z, \{\sigma_y, \rho(t)\}] \} + i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \end{aligned} \quad (\text{E.30})$$

où $\{A, B\} = AB + BA$, désigne l'anticommutateur de A et B. En nous rappelant que :

$$(2\mathcal{N}(\omega) + 1) = \frac{2}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} + 1 = \frac{e^{\hbar\omega/k_B T} + 1}{e^{\hbar\omega/k_B T} - 1} = \frac{\cosh(\hbar\omega/2k_B T)}{\sinh(\hbar\omega/2k_B T)} = \coth\left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T}\right) \quad (\text{E.31})$$

nous trouvons finalement l'expression :

$$\begin{aligned} \dot{\rho}(t) &= i\frac{\Omega_R}{2} [\sigma_x, \rho(t)] \\ &\quad - \frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] \\ &\quad - i\frac{\pi}{8} J(\Omega_R) [\sigma_z, \{\sigma_y, \rho(t)\}] \end{aligned} \quad (\text{E.32})$$

Signalons que le dernier terme de cette équation, indépendant de la température, n'ayant aucun effet sur l'évolution de la population de l'état excitonique, il peut être laissé de côté.

En effet, en utilisant l'équation (E.32), nous obtenons :

$$\begin{aligned}
\dot{\sigma}_x(t) &= i\frac{\Omega_R}{2}[\sigma_x, \sigma_x] - \frac{\pi}{8}J(\Omega_R) \left(\coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) [\sigma_z, [\sigma_z, \sigma_x]] - i[\sigma_z, \{\sigma_y, \sigma_x\}] \right) \\
&= -\frac{\pi}{8}J(\Omega_R) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) [\sigma_z, 2i\sigma_y] \\
&= -\frac{\pi}{2}J(\Omega_R) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) \sigma_x
\end{aligned} \tag{E.33}$$

de même :

$$\begin{aligned}
\dot{\sigma}_y(t) &= i\frac{\Omega_R}{2}(2i\sigma_z) - \frac{\pi}{8}J(\Omega_R) \left(\coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) [\sigma_z, -2i\sigma_x] - i[\sigma_z, 2I] \right) \\
&= -\Omega_R\sigma_z - \frac{\pi}{2}J(\Omega_R) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) \sigma_y
\end{aligned} \tag{E.34}$$

et :

$$\dot{\sigma}_x(t) = \Omega_R\sigma_y \tag{E.35}$$

L'observable accessible expérimentalement étant la population excitonique $(\mathbb{I} + \langle\sigma_z\rangle)/2$, nous voyons que le dernier terme de l'équation (E.32) n'influence en rien nos mesures et il ne sera donc plus considéré par la suite. Nous réécrivons donc (E.32) sous la forme :

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}(t) &= i\frac{\Omega_R(t)}{2}[\sigma_x, \rho(t)] - \frac{\pi}{8}J(\Omega_R(t)) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R(t)}{2k_B T}\right) [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] \\
&= i\frac{\Omega_R(t)}{2}[\sigma_x, \rho(t)] - \frac{K(\Omega_R(t))}{4} [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]]
\end{aligned} \tag{E.36}$$

où nous avons posé

$$K(\Omega_R(t)) = \frac{\pi}{2}J(\Omega_R(t)) \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R(t)}{2k_B T}\right) \tag{E.37}$$

et réintroduit la dépendance temporelle de la pulsation $\Omega_R(t)$ car l'échelle de temps considérée est maintenant celle de l'évolution du système excitonique.

Cherchons désormais à réécrire les équations de Bloch optiques en prenant en compte l'interaction du système excitonique avec les phonons du réseau environnant. En utilisant (E.36), nous trouvons les éléments de matrice :

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{01}(t) &= \langle 0 | \dot{\rho}(t) | 1 \rangle \\
&= \langle 0 | i\frac{\Omega_R(t)}{2}[\sigma_x, \rho(t)] - \frac{K(\Omega_R(t))}{4} [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] | 1 \rangle \\
&= \langle 0 | i\frac{\Omega_R(t)}{2}(\sigma_x\rho(t) - \rho(t)\sigma_x) - \frac{K(\Omega_R(t))}{4}(2\rho(t) - 2\sigma_z\rho(t)\sigma_z) | 1 \rangle \\
&= i\frac{\Omega_R(t)}{2}(\rho_{11}(t) - \rho_{00}(t)) - \frac{K(\Omega_R(t))}{4}(2\rho_{01}(t) + 2\rho_{01}(t)) \\
&= i\frac{\Omega_R(t)}{2}(\rho_{11}(t) - \rho_{00}(t)) - K(\Omega_R(t))\rho_{01}(t)
\end{aligned} \tag{E.38}$$

de même nous trouvons

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{10}(t) &= \langle 1 | \dot{\rho}(t) | 0 \rangle \\
&= \langle 1 | i \frac{\Omega_R(t)}{2} [\sigma_x, \rho(t)] - \frac{K(\Omega_R(t))}{4} [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] | 0 \rangle \\
&= -i \frac{\Omega_R(t)}{2} (\rho_{11}(t) - \rho_{00}(t)) - K(\Omega_R(t)) \rho_{10}(t)
\end{aligned} \tag{E.39}$$

et

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_{11}(t) &= \langle 1 | \dot{\rho}(t) | 1 \rangle \\
&= \langle 1 | i \frac{\Omega_R(t)}{2} [\sigma_x, \rho(t)] - \frac{K(\Omega_R(t))}{4} [\sigma_z, [\sigma_z, \rho(t)]] | 1 \rangle \\
&= i \frac{\Omega_R(t)}{2} (\rho_{01}(t) - \rho_{10}(t)) - \frac{K(\Omega_R(t))}{4} (2\rho_{11}(t) - 2\rho_{11}(t)) \\
&= -i \frac{\Omega_R(t)}{2} (\rho_{10}(t) - \rho_{01}(t))
\end{aligned} \tag{E.40}$$

Nous constatons donc que le couplage entre le système excitonique et les phonons du réseau engendre bien une perte de cohérence, dépendant de la pulsation de Rabi Ω_R du couplage entre la boîte quantique et le champ électromagnétique incident. En prenant de plus en compte les temps de relaxation caractéristiques T_1 et T_2 de la boîte considérée, les équations de Bloch optiques s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l}
\dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\
\dot{\sigma}_{00}(t) = -\sigma_{11}(t) \\
\dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + K(\Omega_R(t)) \right) \hat{\sigma}_{10}(t) \\
\dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = \frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + K(\Omega_R(t)) \right) \hat{\sigma}_{01}(t)
\end{array} \right. \tag{E.41}$$

Comme par ailleurs, dans les systèmes que nous considérons, $k_B T \gg \hbar \Omega_R(t)/2$, nous pouvons faire l'approximation :

$$K(\Omega_R(t)) = \frac{\pi}{2} J(\Omega_R(t)) \coth\left(\frac{\hbar \Omega_R(t)}{2k_B T}\right) \approx \frac{\pi}{2} J(\Omega_R(t)) \frac{2k_B T}{\hbar \Omega_R(t)} \tag{E.42}$$

avec :

$$J(\Omega_R(t)) = \frac{(\mathcal{D}_e - \mathcal{D}_h)^2}{4\pi^2 \hbar \mu c_s^5} \Omega_R^3(t) \tag{E.43}$$

soit :

$$K(\Omega_R(t)) \approx \frac{(\mathcal{D}_e - \mathcal{D}_h)^2}{4\pi \hbar^2 \mu c_s^5} k_B T \Omega_R^2(t) = \kappa(T) \Omega_R^2(t) \tag{E.44}$$

avec

$$\kappa(T) = \frac{(\mathcal{D}_e - \mathcal{D}_h)^2}{4\pi\hbar^2\mu c_s^5} k_B T = \mathcal{K}T \quad (\text{E.45})$$

où le coefficient de proportionnalité \mathcal{K} dépend uniquement des propriétés du matériau massif et reste donc toujours le même, quelle que soit la boîte considérée. D'après les différentes valeurs numériques trouvées dans la littérature pour les paramètres du GaAs : $(\mathcal{D}_e - \mathcal{D}_h) \approx -8.5 \text{ eV}$, $\mu \approx 5.4 \text{ g.cm}^{-3}$, $c_s \approx 5.1 \text{ nm.ps}^{-1}$ [263, 264], nous pouvons estimer à $\mathcal{K}_{theo} \approx 10 \text{ fs.K}^{-1}$.

Nous pouvons donc finalement réécrire les équations de Bloch optiques sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\sigma}_{11}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\hat{\sigma}_{10}(t) - \hat{\sigma}_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{10}(t) = -\frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_R^2(t) \right) \hat{\sigma}_{10}(t) \\ \dot{\hat{\sigma}}_{01}(t) = \frac{i}{2} \Omega_R(t) (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \left(\frac{1}{T_2} + \kappa(T) \Omega_R^2(t) \right) \hat{\sigma}_{01}(t) \end{array} \right. \quad (\text{E.46})$$

Bibliographie

- [1] Richard P. Feynman. Simulating physics with computers. *International Journal of Theoretical Physics*, 21(6) :467–488, June 1982.
- [2] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum Computations with Cold Trapped Ions. *Physical Review Letters*, 74(20) :4091–4094, May 1995.
- [3] Y. Nakamura, Yu Pashkin, and J. S. Tsai. Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box. *Nature*, 398(6730) :786–788, April 1999.
- [4] John M. Martinis, S. Nam, J. Aumentado, and C. Urbina. Rabi Oscillations in a Large Josephson-Junction Qubit. *Physical Review Letters*, 89(11) :117901+, August 2002.
- [5] Q. A. Turchette, C. J. Hood, W. Lange, H. Mabuchi, and H. J. Kimble. Measurement of Conditional Phase Shifts for Quantum Logic. *Physical Review Letters*, 75(25) :4710–4713, December 1995.
- [6] M. Scholz, T. Aichele, S. Ramelow, and O. Benson. Deutsch-Jozsa Algorithm Using Triggered Single Photons from a Single Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 96 :180501+, May 2006.
- [7] Peter W. Shor. Scheme for reducing decoherence in quantum computer memory. *Physical Review A*, 52(4) :R2493–R2496, October 1995.
- [8] Lieven M. K. Vandersypen, Matthias Steffen, Gregory Breyta, Costantino S. Yannoni, Mark H. Sherwood, and Isaac L. Chuang. Experimental realization of Shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. *Nature*, 414(6866) :883–887, December 2001.
- [9] D. Estève, J. M. Raimond, and J. Dalibard. *Quantum entanglement and information processing*, volume 79. Elsevier, 2004.
- [10] Daniel Loss and David P. DiVincenzo. Quantum computation with quantum dots. *Physical Review A*, 57(1) :120–126, January 1998.
- [11] Mark S. Sherwin, Atac Imamoglu, and Thomas Montroy. Quantum computation with quantum dots and terahertz cavity quantum electrodynamics. *Physical Review A*, 60(5) :3508–3514, November 1999.

- [12] 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. *Nature*, 406(6799) :968–970, August 2000.
- [13] Charles Santori, David Fattal, Jelena Vuckovic, Glenn S. Solomon, and Yoshihisa Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature*, 419(6907) :594–597, October 2002.
- [14] Naresh Chand, E. E. Becker, J. P. van der Ziel, S. N. G. Chu, and N. K. Dutta. Excellent uniformity and very low threshold current density strained InGaAs quantum well diode lasers on GaAs substrate. *Applied Physics Letters*, 58(16) :1704–1706, 1991.
- [15] 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(7014) :197–200, November 2004.
- [16] A. S. Bracker, M. Scheibner, M. F. Doty, E. A. Stinaff, I. V. Ponomarev, J. C. Kim, L. J. Whitman, T. L. Reinecke, and D. Gammon. Engineering electron and hole tunneling with asymmetric InAs quantum dot molecules. *Applied Physics Letters*, 89(23) :233110+, 2006.
- [17] Oliver Benson, Charles Santori, Matthew Pelton, and Yoshihisa Yamamoto. Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 84(11) :2513–2516, March 2000.
- [18] R. Melet. *Manipulation tout optique des états électroniques d'une boîte quantique unique*. PhD thesis, Paris VI, 2008.
- [19] A. Enderlin. *Contrôle cohérent des excitations électroniques d'une boîte quantique semi-conductrice*. PhD thesis, Paris VI, 2010.
- [20] N-W. Ashcroft and N-D. Mermin. *Physique des solides*. EDP Sciences, 2002.
- [21] C. Kittel. *Physique de l'état solide*. Dunod, 2006.
- [22] M. Fox. *Optical Properties of Solids*. Ed. Cambridge, 2010.
- [23] M. Cardona and P.Y. Yu. *Fundamentals of semiconductors : Physics and materials properties*. Springer-Verlag, 1996.
- [24] R. Dingle, W. Wiegmann, and C. H. Henry. Quantum states of confined carriers in very thin $\text{al}_x\text{ga}_{1-x}\text{As-gaas-al}_x\text{ga}_{1-x}\text{As}$ heterostructures. *Physical Review Letters*, 33 :827–830, September 1974.
- [25] F. Capasso. Band-Gap Engineering : From Physics and Materials to New Semiconductor Devices. *Science*, 235(4785) :172–176, January 1987.

- [26] L. Goldstein, F. 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(10) :1099–1101, 1985.
- [27] D. J. Eaglesham and M. Cerullo. Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si(100). *Physical Review Letters*, 64(16) :1943–1946, April 1990.
- [28] S. Guha, A. Madhukar, and K. C. Rajkumar. Onset of incoherency and defect introduction in the initial stages of molecular beam epitaxial growth of highly strained InGaAs on GaAs(100). *Applied Physics Letters*, 57(20) :2110, 1990.
- [29] C. W. Snyder, B. G. Orr, D. Kessler, and L. M. Sander. Effect of strain on surface morphology in highly strained InGaAs films. *Physical Review Letters*, 66 :3032–3035, June 1991.
- [30] 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(23) :3203–3205, 1993.
- [31] P. Michler. *Single Semiconductor Quantum Dots*. Springer, 2009.
- [32] D. Bimberg, M. Grundmann, and N.N. Ledentsov. *Quantum Dot Heterostructures*. Wiley, 1999.
- [33] G.B. Stringfellow. *Organometallic Vapor-Phase Epitaxy : Theory and Practice*. Academic Press, 1999.
- [34] N. Kirstaedter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, S. S. Ruvimov, M. V. Maximov, P. S. Kopev, Zh Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Goesele, and J. Heydenreich. Low threshold, large To injection laser emission from (InGa)As quantum dots. *Electronics Letters*, 30(17) :1416+, 1994.
- [35] I.M. Stransky and L. von Krastanov. Abhandlungen der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Klasse. *Akad. Wiss. Lit. Mainz Math.-Naturwiss. Klasse IIb*, 146 :797, 1939.
- [36] J. M. Gerard, J. B. Genin, J. Lefebvre, J. M. Moison, N. Lebouche, and F. Barthe. Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. *Journal of Crystal Growth*, 150 :351–356, May 1995.
- [37] P. B. Joyce, T. J. Krzyzewski, P. H. Steans, G. R. Bell, J. H. Neave, and T. S. Jones. Shape and surface morphology changes during the initial stages of encapsulation of InAs/GaAs quantum dots. *Surface Science*, 492(3) :345–353, October 2001.
- [38] Aristide Lemaître, Gilles Patriarche, and Frank Glas. Composition profiling of InAs/GaAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 85 :3717, 2004.
- [39] Z.M. Wang. *Self-Assembled Quantum Dots*. Springer, 2008.

- [40] D. M. Bruls, J. W. A. M. Vugs, P. M. Koenraad, H. W. M. Salemink, J. H. Wolter, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, Fei Long, and S. P. A. Gill. Determination of the shape and indium distribution of low-growth-rate InAs quantum dots by cross-sectional scanning tunneling microscopy. *Applied Physics Letters*, 81(9) :1708–1710, 2002.
- [41] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. Andre, and O. Vatel. Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs. *Applied Physics Letters*, 64(2) :196–198, 1994.
- [42] S. Suhai. Green's-function study of optical properties of polymers : Charge-transfer exciton spectra of polydiacetylenes. *Physical Review B*, 29 :4570–4581, April 1984.
- [43] G. Fishman. *Semi-Conducteurs les Bases de la Theorie K.P.* Ecole Polytechnique, 2010.
- [44] Craig Pryor. Eight-band calculations of strained InAs/GaAs quantum dots compared with one-, four-, and six-band approximations. *Physical Review B*, 57(12) :7190–7195, March 1998.
- [45] O. Stier, M. Grundmann, and D. Bimberg. Electronic and optical properties of strained quantum dots modeled by 8-band kp theory. *Physical Review B*, 59 :5688–5701, February 1999.
- [46] D.J.S. Robinson. *A Course in the Theory of Groups*. Springer, 1996.
- [47] W. Shockley. Energy Band Structures in Semiconductors. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 78 :173–174, April 1950.
- [48] R. J. Elliott. Theory of the Effect of Spin-Orbit Coupling on Magnetic Resonance in Some Semiconductors. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 96 :266–279, October 1954.
- [49] J. M. Luttinger. Quantum Theory of Cyclotron Resonance in Semiconductors : General Theory. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 102(4) :1030–1041, May 1956.
- [50] Evan O. Kane. Band structure of indium antimonide. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 1(4) :249–261, January 1957.
- [51] Michael Rohlfing, Peter Krüger, and Johannes Pollmann. Quasiparticle band-structure calculations for C, Si, Ge, GaAs, and SiC using Gaussian-orbital basis sets. *Physical Review B*, 48 :17791–17805, December 1993.
- [52] A. J. Williamson, L. W. Wang, and Alex Zunger. Theoretical interpretation of the experimental electronic structure of lens-shaped self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 62(19) :12963–12977, November 2000.
- [53] <http://ladon.igfr.csic.es/docs/fhi98md/node19.html>.

- [54] G. Bastard. *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. Les éditions de physique, 1988.
- [55] U. Bockelmann and G. Bastard. Interband absorption in quantum wires. I. Zero-magnetic-field case. *Physical Review B*, 45(4) :1688–1699, January 1992.
- [56] J. Y. Marzin and G. Bastard. Calculation of the energy levels in quantum dots. *Solid State Communications*, 92(5) :437–442, November 1994.
- [57] A. Catellani and P. Ballone. Islands at semiconductor interfaces. *Physical Review B*, 45 :14197–14203, June 1992.
- [58] F. Patella, S. Nufri, F. Arciprete, M. Fanfoni, E. Placidi, A. Sgarlata, and A. Balzarotti. Tracing the two- to three-dimensional transition in the InAs/GaAs(001) heteroepitaxial growth. *Physical Review B*, 67 :205308+, May 2003.
- [59] G. Grynberg, A. Aspect, and C. Fabre. *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*. Ed. Ellipses, 1997.
- [60] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloe. *Mécanique quantique I & II*. Hermann, 1997.
- [61] B. Sapoval and C. Hermann. *Physique des semi-conducteurs*. Ellipses, 1996.
- [62] Lucio C. Andreani, Giovanna Panzarini, and Jean M. Gérard. Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory. *Physical Review B*, 60(19) :13276–13279, November 1999.
- [63] J. Feldmann, G. Peter, E. O. Göbel, P. Dawson, K. Moore, C. Foxon, and R. J. Elliott. Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells. *Physical Review Letters*, 59 :2337–2340, November 1987.
- [64] U. Bockelmann. Exciton relaxation and radiative recombination in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 48 :17637–17640, December 1993.
- [65] A. Vasanelli. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boîtes quantiques simples et couplées verticalement*. PhD thesis, Paris VI, 2002.
- [66] Y. Toda, O. Moriwaki, M. Nishioka, and Y. Arakawa. Efficient carrier relaxation mechanism in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots based on the existence of continuum states. *Physical Review Letters*, 82(20) :4114–4117, May 1999.
- [67] Voicu Popescu, Gabriel Bester, and Alex Zunger. Coexistence and coupling of zero-dimensional, two-dimensional, and continuum resonances in nanostructures. *Physical Review B*, 80(4) :045327+, Jul 2009.
- [68] R.S. Knox. *Theory of excitons*. Academic Press Inc, 1963.
- [69] Gregory H. Wannier. The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 52(3) :191–197, August 1937.

- [70] J. Frenkel. On the Transformation of light into Heat in Solids. I. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 37(1) :17–44, January 1931.
- [71] M. Combescot and M. A. Dupertuis. The carrier antibinding in quantum dots : a charge separation effect. *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems*, 50(3) :459–464, April 2006.
- [72] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195315+, May 2002.
- [73] G.E. Bir and G.L. Pikus. *Symetry and strain induced effects in semiconductors*. Ed. Wiley, 1974.
- [74] Y. Léger. *Détection de spins individuels dans les boîtes quantiques magnétiques*. PhD thesis, Grenoble I, 2007.
- [75] A. Franceschetti, L. W. Wang, H. Fu, and A. Zunger. Short-range versus long-range electron-hole exchange interactions in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 58 :R13367–R13370, November 1998.
- [76] I. Favero. *Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boîtes quantiques de semiconducteurs*. PhD thesis, Paris VI, 2005.
- [77] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 76(16) :3005–3008, April 1996.
- [78] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg. Size-dependent fine-structure splitting in self-organized inas/gaas quantum dots. *Physical Review Letters*, 95(25) :257402+, December 2005.
- [79] Gabriel Bester, Selvakumar Nair, and Alex Zunger. Pseudopotential calculation of the excitonic fine structure of million-atom self-assembled $\text{in}_{1-x}\text{ga}_x\text{as/gaas}$ quantum dots. *Physical Review B*, 67 :161306+, April 2003.
- [80] Gabriel Bester and Alex Zunger. Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry : atomistic symmetry, atomic relaxation, and piezoelectric effects. *Physical Review B*, 71 :045318+, January 2005.
- [81] G. L. Bir and G. E. Pikus. Exchange interaction in excitons in semiconductors. *Sov. Phys. JETP*, pages 108–114, July.
- [82] E. L. Ivchenko. Fine Structure of Excitonic Levels in Semiconductor Nanostructures. *phys. stat. sol. (a)*, 164(1) :487–492, 1997.
- [83] M. Suffczynski and L. Swierkowski. Long-range exchange splitting in excitons. *Physica B+C*, 89 :126–127, April 1977.

- [84] 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(8) :1780–1783, February 1999.
- [85] M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard, and A. Forchel. Hidden symmetries in the energy levels of excitonic /‘artificial atoms/’. *Nature*, 405(6789) :923–926, June 2000.
- [86] H. Y. Ramirez, C. H. Lin, C. C. Chao, Y. Hsu, W. T. You, S. Y. Huang, Y. T. Chen, H. C. Tseng, W. H. Chang, S. D. Lin, and S. J. Cheng. Optical fine structures of highly quantized InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 81(24) :245324+, June 2010.
- [87] J. D. Plumhof, V. Křápek, F. Ding, K. D. Jöns, R. Hafenbrak, P. Klenovský, A. Herklotz, K. Dörr, P. Michler, A. Rastelli, and O. G. Schmidt. Strain-induced anticrossing of bright exciton levels in single self-assembled $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ and $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$ quantum dots. *Physical Review B*, 83 :121302+, March 2011.
- [88] Chia H. Lin, Wen T. You, Hsiang Y. Chou, Shun J. Cheng, Sheng Di Lin, and Wen H. Chang. Anticorrelation between the splitting and polarization of the exciton fine structure in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 83 :075317+, February 2011.
- [89] R. J. Young, R. M. Stevenson, A. J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, K. M. Groom, A. I. Tartakovskii, and M. S. Skolnick. Inversion of exciton level splitting in quantum dots. *Physical Review B*, 72(11) :113305+, September 2005.
- [90] R. Seguin, S. Rodt, A. Schliwa, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg. Size-dependence of anisotropic exchange interaction in InAs/GaAs quantum dots. *phys. stat. sol. (b)*, 243(15) :3937–3941, 2006.
- [91] Ranber Singh and Gabriel Bester. Lower Bound for the Excitonic Fine Structure Splitting in Self-Assembled Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 104(19) :196803+, May 2010.
- [92] Ming Gong, Weiwei Zhang, Guang C. Guo, and Lixin He. Exciton Polarization, Fine-Structure Splitting, and the Asymmetry of Quantum Dots under Uniaxial Stress. *Physical Review Letters*, 106 :227401+, May 2011.
- [93] T. H. Stievater, Xiaoqin Li, D. G. Steel, D. Gammon, D. S. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. J. Sham. Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 87(13) :133603+, September 2001.
- [94] Martin Kroner, Kathrina M. Weiss, Benjamin Biedermann, Stefan Seidl, Stephan Manus, Alexander W. Holleitner, Antonio Badolato, Pierre M. Petroff, Brian D.

- Gerardot, Richard J. Warburton, and Khaled Karrai. Optical Detection of Single-Electron Spin Resonance in a Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 100 :156803+, April 2008.
- [95] 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(6898) :612–614, August 2002.
- [96] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, and F. Henneberger. Photon Beats from a Single Semiconductor Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 86 :3172–3175, April 2001.
- [97] K. Kowalik, O. Krebs, A. Lemaitre, J. A. Gaj, and P. Voisin. Optical alignment and polarization conversion of the neutral-exciton spin in individual *InAs/GaAs* quantum dots. *Physical Review B*, 77(16) :161305+, April 2008.
- [98] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao, and C. K. Shih. Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity. *Physical Review Letters*, 99(18) :187402+, November 2007.
- [99] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel, and P. Michler. Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity. *Physical Review Letters*, 103(16) :167402+, October 2009.
- [100] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph, C. Diederichs, and G. Cassabois. Ultra-coherent single photon source. *Applied Physics Letters*, 99(26) :261904+, 2011.
- [101] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet, and R. Grousson. Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime. *Physical Review B*, 78(7) :073301+, August 2008.
- [102] Romain Melet, Valia Voliotis, Roger Grousson, Xue-Lun Wang, Aristide Lemaître, and Anthony Martinez. Coherent optical manipulations of the fundamental state in a single quantum dot. *Superlattices and Microstructures*, 43(5-6) :474–477, May 2008.
- [103] J. B. Theeten, D. E. Aspnes, and R. P. H. Chang. A new resonant ellipsometric technique for characterizing the interface between GaAs and its plasma-grown oxide. *Journal of Applied Physics*, 49(12) :6097–6102, 1978.
- [104] Sadao Adachi. Optical properties of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ alloys. *Physical Review B*, 38 :12345–12352, December 1988.
- [105] D. E. Aspnes, S. M. Kelso, R. A. Logan, and R. Bhat. Optical properties of $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$. *Journal of Applied Physics*, 60(2) :754–767, 1986.

- [106] G. Lecamp. *Contrôle de l'émission spontanée et application aux microcavités*. PhD thesis, Paris XI, 2007.
- [107] M. U. Wehner, M. H. Ulm, and M. Wegener. Scanning interferometer stabilized by use of Pancharatnam's phase. *Opt. Lett.*, 22(19) :1455–1457, October 1997.
- [108] S. Pancharatnam. Generalized theory of interference and its applications. *Proc. Indian Acad. Sci.*, pages 388–416, 1956.
- [109] I. Favero, A. Berthelot, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph, 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(7) :073308+, February 2007.
- [110] L. Besombes, K. Kheng, and D. Martrou. Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface. *Physical Review Letters*, 85(2) :425–428, July 2000.
- [111] A. Berthelot. *Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques*. PhD thesis, Paris VI, 2008.
- [112] E. D. Palik, Hacène Boukari, and Robert W. Gammon. Experimental study of the effect of surface defects on the finesse and contrast of a Fabry-Perot interferometer. *Appl. Opt.*, 35(1) :38–50, January 1996.
- [113] J.P. Perez. *Optique géométrique et ondulatoire*. Masson, 1994.
- [114] M. Fox. *Quantum optics, An introduction*. Ed. Cambridge, 2006.
- [115] M.O. Scully and M.S. Zubairy. *Quantum optics*. Cambridge University Press, 1997.
- [116] L. Mandel and E. Wolf. *Optical coherence and quantum optics*. Ed. Cambridge, 1995.
- [117] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. CNRS éditions, 2001.
- [118] B. Cagnac and J-P. Faroux. *Lasers : interaction lumière-atomes*. CNRS éditions, 2001.
- [119] I. I. Rabi. Space Quantization in a Gyating Magnetic Field. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 51(8) :652–654, April 1937.
- [120] L. Allen and J. H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Ed. Dover, 1987.
- [121] N. Pottier. *Physique statistique hors d'équilibre : Processus irréversibles linéaires*. CNRS éditions, 2007.
- [122] B. Diu, D. Lederer, and B. Rouler. *Elements de Physique statistique*. Hermann, 1996.
- [123] H.P. Breuer and F. Petruccione. *The Theory of Open Quantum Systems*. Oxford University Press, 2002.
- [124] A. Messiah. *Mécanique quantique*. Dunod, 1995.

- [125] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. *Quantum computation and quantum information*. Ed. Cambridge, 2000.
- [126] Hyatt M. Gibbs. Incoherent Resonance Fluorescence from a Rb Atomic Beam Excited by a Short Coherent Optical Pulse. *Physical Review A*, 8(1) :446–455, July 1973.
- [127] P.L. Kelley, I.P Kaminow, and G.P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics*. Academic Press Inc, 2001.
- [128] A. J. Ramsay, Achanta V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Damping of exciton rabi rotations by acoustic phonons in optically excited ingaas/gaas quantum dots. *Physical Review Letters*, 104(1) :017402+, January 2010.
- [129] A. Krugel, V. M. Axt, T. Kuhn, P. Machnikowski, and A. Vagov. The role of acoustic phonons for Rabi oscillations in semiconductor quantum dots. *Applied Physics B*, 81(7) :897–904, November 2005.
- [130] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K. Shih. Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 72(3) :035306+, July 2005.
- [131] H. J. Zhou, S. D. Liu, M. T. Cheng, Q. Q. Wang, Y. Y. Li, and Q. K. Xue. Rabi oscillation damped by exciton leakage and Auger capture in quantum dots. *Opt. Lett.*, 30(23) :3213–3215, December 2005.
- [132] B. Patton, U. Woggon, and W. Langbein. Coherent Control and Polarization Readout of Individual Excitonic States. *Physical Review Letters*, 95(26) :266401+, December 2005.
- [133] J. M. Villas Bôas, Sergio E. Ulloa, and A. O. Govorov. Decoherence of Rabi Oscillations in a Single Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 94 :057404+, February 2005.
- [134] J. Förstner, C. Weber, J. Danckwerts, and A. Knorr. Phonon-Assisted Damping of Rabi Oscillations in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 91(12) :127401+, September 2003.
- [135] P. Machnikowski and L. Jacak. Resonant nature of phonon-induced damping of Rabi oscillations in quantum dots. *Physical Review B*, 69(19) :193302+, May 2004.
- [136] Ahsan Nazir. Photon statistics from a resonantly driven quantum dot. *Physical Review B*, 78 :153309+, October 2008.
- [137] I. Magnusdottir, S. Bischoff, A. V. Uskov, and J. Mørk. Geometry dependence of Auger carrier capture rates into cone-shaped self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 67 :205326+, May 2003.

- [138] A. Vagov, M. D. Croitoru, V. M. Axt, T. Kuhn, and F. M. Peeters. Nonmonotonic Field Dependence of Damping and Reappearance of Rabi Oscillations in Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 98 :227403+, June 2007.
- [139] A. J. Ramsay, T. M. Godden, S. J. Boyle, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, and M. S. Skolnick. Phonon-induced rabi-frequency renormalization of optically driven single ingaas/gaas quantum dots. *Physical Review Letters*, 105 :177402+, October 2010.
- [140] R. Hostein. *Étude des propriétés optiques et dynamiques des boîtes quantiques InAsP/InP(001); Application à la réalisation de sources de photons uniques et lasers à cristaux photoniques émettant à 1.5 μm* . PhD thesis, Paris VI, 2009.
- [141] 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) :76–78, 2000.
- [142] H. S. Nguyen. *Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semi-conductrices*. PhD thesis, Paris VI, 2011.
- [143] 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(12) :123105+, 2006.
- [144] Romain Melet, Roger Grousson, Valia Voliotis, and Xue-Lun Wang. Non-linear optics on an exciton state in a single quantum dot. *phys. stat. sol. (b)*, 245(6) :1098–1101, 2008.
- [145] Peter Domokos, Peter Horak, and Helmut Ritsch. Quantum description of light-pulse scattering on a single atom in waveguides. *Physical Review A*, 65(3) :033832+, March 2002.
- [146] Guoqiang Cui and M. Raymer. Quantum efficiency of single-photon sources in the cavity-QED strong-coupling regime. *Opt. Express*, 13(24) :9660–9665, November 2005.
- [147] David Press, Stephan Götzinger, Stephan Reitzenstein, Carolin Hofmann, Andreas Löffler, Martin Kamp, Alfred Forchel, and Yoshihisa Yamamoto. Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime. *Physical Review Letters*, 98(11) :117402+, March 2007.
- [148] R. Grousson, V. Voliotis, P. Lavallard, M. L. Roblin, and R. Planel. Determination of excitonic properties in GaAs/Ga_{1-x}Al_xAs quantum wells by optical waveguiding experiments. *Semiconductor Science and Technology*, 8(7) :1217+, January 1993.

- [149] R. C. Hilborn. Erratum : “Einstein coefficients, cross sections, f values, dipole moments, and all that” [Am. J. Phys. 50, 982 (1982)]. *American Journal of Physics*, 51 :471, May 1983.
- [150] B. Cagnac, L. Tchang-Brillet, and J.C. Pebey-Péroula. *Physique atomique*. Dunod, 2005.
- [151] C. Kammerer. *Spectroscopie Optique de boîtes quantiques uniques : effets de l’environnement*. PhD thesis, Paris VI, 2002.
- [152] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassaboïs, C. Delalande, Ph, 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(4) :041306+, July 2002.
- [153] Alexandre Enderlin, Marco Ravaro, Valia Voliotis, Roger Grousson, and Xue L. Wang. Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms. *Physical Review B*, 80(8) :085301+, August 2009.
- [154] X. Marie, P. Le Jeune, T. Amand, M. Brousseau, J. Barrau, M. Paillard, and R. Planel. Coherent Control of the Optical Orientation of Excitons in Quantum Wells. *Physical Review Letters*, 79(17) :3222–3225, October 1997.
- [155] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D. S. Katzer, and D. G. Steel. Coherent Optical Control of the Quantum State of a Single Quantum Dot. *Science*, 282(5393) :1473–1476, November 1998.
- [156] H. Htoon, T. Takagahara, D. Kulik, O. Baklenov, A. L. Holmes, and C. K. Shih. Interplay of Rabi Oscillations and Quantum Interference in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 88(8) :087401+, February 2002.
- [157] S. Michaelis de Vasconcellos, S. Gordon, M. Bichler, T. Meier, and A. Zrenner. Coherent control of a single exciton qubit by optoelectronic manipulation. *Nat Photon*, 4(8) :545–548, August 2010.
- [158] G. Cassaboïs. *Origine et limites du modèle de l’atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs*. HDR, Paris VI, 2006.
- [159] T. Guillet. *Nature du désordre et propriétés optiques des excitons dans les fils quantiques semiconducteurs : de la boîte au fil*. PhD thesis, Paris VI, 2002.
- [160] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, Lidong Zhang, E. Hu, W. V. Schoenfeld, and P. M. Petroff. Cavity-quantum electrodynamics using a single InAs quantum dot in a microdisk structure. *Applied Physics Letters*, 78(25) :3932–3934, 2001.

- [161] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck. Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots. *Physical Review B*, 70(3) :033301+, July 2004.
- [162] T. Takagahara. Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 60(4) :2638–2652, July 1999.
- [163] T. Takagahara. Electron-phonon interactions and excitonic dephasing in semiconductor nanocrystals. *Physical Review Letters*, 71 :3577–3580, November 1993.
- [164] Dara P. S. McCutcheon and Ahsan Nazir. Coherent and incoherent dynamics in excitonic energy transfer : Correlated fluctuations and off-resonance effects. *Physical Review B*, 83 :165101+, April 2011.
- [165] Pawel Machnikowski. Change of Decoherence Scenario and Appearance of Localization due to Reservoir Anharmonicity. *Physical Review Letters*, 96 :140405+, April 2006.
- [166] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission. *Physical Review B*, 63(15) :155307+, March 2001.
- [167] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg. Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 87(15) :157401+, September 2001.
- [168] T. Grange. *Relaxation et décohérence des polarons dans les boîtes quantiques de semiconducteurs*. PhD thesis, Paris VI, 2008.
- [169] R. Ferreira. *Electrons et phonons dans les nanostructures de semiconducteurs*. HDR, Paris VI, 2006.
- [170] F. Bras, S. Sauvage, G. Fishman, P. Boucaud, J. M. Ortega, and J. M. Gérard. Fast decoherence of slowly relaxing polarons in semiconductor InAs quantum dots. *EPL (Europhysics Letters)*, pages 390+, January 2007.
- [171] T. Grange, R. Ferreira, and G. Bastard. Polaron relaxation in self-assembled quantum dots : Breakdown of the semiclassical model. *Physical Review B*, 76(24) :241304+, December 2007.
- [172] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaitre, and J. M. Gerard. Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons. *Physical Review Letters*, 83(20) :4152–4155, November 1999.
- [173] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gerard. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature Physics*, 2(11) :759–764, October 2006.

- [174] I. Favero, A. Berthelot, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph, 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(7) :073308+, February 2007.
- [175] M. Abbarchi, F. Troiani, C. Mastrandrea, G. Goldoni, T. Kuroda, T. Mano, K. Sakoda, N. Koguchi, S. Sanguinetti, A. Vinattieri, and M. Gurioli. Spectral diffusion and line broadening in single self-assembled GaAs/AlGaAs quantum dot photoluminescence. *Applied Physics Letters*, 93(16) :162101+, 2008.
- [176] H. Kamada and T. Kutsuwa. Broadening of single quantum dot exciton luminescence spectra due to interaction with randomly fluctuating environmental charges. *Physical Review B*, 78(15) :155324+, October 2008.
- [177] A. Jankovic. *Etats électroniques des boîtes quantiques semiconducteur : rôle de l'environnement et couplage dépendant du spin*. PhD thesis, Paris VI, 2004.
- [178] H. D. Robinson and B. B. Goldberg. Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 61 :R5086–R5089, February 2000.
- [179] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph, C. Diederichs, and G. Cassabois. Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 108 :057401+, January 2012.
- [180] Catherine Tonin, Richard Hostein, Valia Voliotis, Roger Grousson, Aristide Lemaitre, and Anthony Martinez. Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 85 :155303+, April 2012.
- [181] V. Bressler Hill, S. Varma, A. Lorke, B. Z. Nosho, P. M. Petroff, and W. H. Weinberg. Island Scaling in Strained Heteroepitaxy : InAs/GaAs(001). *Physical Review Letters*, 74 :3209–3212, April 1995.
- [182] M. V. Belousov, N. N. Ledentsov, M. V. Maximov, P. D. Wang, I. N. Yasievich, N. N. Faleev, I. A. Kozin, V. M. Ustinov, P. S. Kop'ev, and C. M. Sotomayor Torres. Energy levels and exciton oscillator strength in submonolayer InAs-GaAs heterostructures. *Physical Review B*, 51 :14346–14351, May 1995.
- [183] S. Ruvimov, P. Werner, K. Scheerschmidt, U. Gösele, J. Heydenreich, U. Richter, N. N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. M. Ustinov, Yu, P. S. Kop'ev, and Zh. Structural characterization of (In,Ga)As quantum dots in a GaAs matrix. *Physical Review B*, 51 :14766–14769, May 1995.
- [184] Y. Hasegawa, H. Kiyama, Q. K. Xue, and T. Sakurai. Atomic structure of faceted planes of three-dimensional InAs islands on GaAs(001) studied by scanning tunneling microscope. *Applied Physics Letters*, 72(18) :2265–2267, 1998.

- [185] Wenquan Ma, Richard Notzel, Hans P. Schonherr, and Klaus H. Ploog. Shape transition of coherent three-dimensional (In,Ga)As islands on GaAs(100). *Applied Physics Letters*, 79(25) :4219–4221, 2001.
- [186] O. Brandt, H. Lage, and K. Ploog. Heavy- and light-hole character of optical transitions in InAs/GaAs single-monolayer quantum wells. *Physical Review B*, 45 :4217–4220, February 1992.
- [187] J. M. Luttinger and W. Kohn. Motion of Electrons and Holes in Perturbed Periodic Fields. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 97(4) :869–883, February 1955.
- [188] P. Lawaetz. Valence-Band Parameters in Cubic Semiconductors. *Physical Review B*, 4(10) :3460–3467, November 1971.
- [189] M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg. InAs/GaAs pyramidal quantum dots : Strain distribution, optical phonons, and electronic structure. *Physical Review B*, 52 :11969–11981, October 1995.
- [190] C. Pryor, J. Kim, L. W. Wang, A. J. Williamson, and A. Zunger. Comparison of two methods for describing the strain profiles in quantum dots. *Journal of Applied Physics*, 83(5) :2548–2554, 1998.
- [191] A. D. Andreev and E. P. O’Reilly. Theory of the electronic structure of GaN/AlN hexagonal quantum dots. *Physical Review B*, 62(23) :15851–15870, December 2000.
- [192] G. L. Bir and G. E. Pikus. . *Sov. Phys. Solid State*, page 2221, February.
- [193] Y. Léger, L. Besombes, L. Maingault, and H. Mariette. Valence-band mixing in neutral, charged, and Mn-doped self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 76(4) :045331+, July 2007.
- [194] S. Ohno, S. Adachi, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura. Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots. *Applied Physics Letters*, 98(16) :161912+, 2011.
- [195] E.L. Ivchenko. *Optical spectroscopy of semiconductor nanostructures*. Springer, 2004.
- [196] M. Z. Maialle, de Andrada, and L. J. Sham. Exciton spin dynamics in quantum wells. *Physical Review B*, 47 :15776–15788, June 1993.
- [197] B. A. Joyce, J. L. Sudijono, J. G. Belk, H. Yamaguchi, X. M. Zhang, H. T. Dobbs, A. Zangwill, D. D. Vvedensky, and T. S. Jones. A Scanning Tunneling Microscopy-Reflection High Energy Electron Diffraction-Rate Equation Study of the Molecular Beam Epitaxial Growth of InAs on GaAs(001), (110) and (111)A – Quantum Dots and Two-Dimensional Modes. *Japanese Journal of Applied Physics*, 36 :4111–4117, June 1997.
- [198] I. Kegel, T. H. Metzger, A. Lorke, J. Peisl, J. Stangl, G. Bauer, J. M. Garcia, and P. M. Petroff. Nanometer-scale resolution of strain and interdiffusion in self-

- assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review Letters*, 85(8) :1694–1697, August 2000.
- [199] M. A. Migliorato, A. G. Cullis, M. Fearn, and J. H. Jefferson. Atomistic simulation of In_xGa_{1-x}As/GaAs quantum dots with nonuniform composition. *Physica E : Low-dimensional Systems and Nanostructures*, 13(2-4) :1147–1150, March 2002.
- [200] Stefan Seidl, Martin Kroner, Alexander Högele, Khaled Karrai, Richard J. Warburton, Antonio Badolato, and Pierre M. Petroff. Effect of uniaxial stress on excitons in a self-assembled quantum dot. *Applied Physics Letters*, 88(20) :203113+, 2006.
- [201] Dou Xiu-Ming, Sun Bao-Quan, Wang Bao-Rui, Ma Shan-Shan, Zhou Rong, Huang She-Song, Ni Hai-Qiao, and Niu Zhi-Chuan. Tuning Photoluminescence Energy and Fine Structure Splitting in Single Quantum Dots by Uniaxial Stress. *Chinese Physics Letters*, 25(3) :1120+, March 2008.
- [202] Ranber Singh and Gabriel Bester. Lower Bound for the Excitonic Fine Structure Splitting in Self-Assembled Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 104(19) :196803+, May 2010.
- [203] Chia H. Lin, Wen T. You, Hsiang Y. Chou, Shun J. Cheng, Sheng Di Lin, and Wen H. Chang. Anticorrelation between the splitting and polarization of the exciton fine structure in single self-assembled InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 83 :075317+, February 2011.
- [204] T. Belhadj, 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(5) :051111+, 2010.
- [205] F. Tinjod, B. Gilles, S. Moehl, K. Kheng, and H. Mariette. II/VI quantum dot formation induced by surface energy change of a strained layer. *Applied Physics Letters*, 82(24) :4340+, 2003.
- [206] A. V. Koudinov, I. A. Akimov, Yu, and F. Henneberger. Optical and magnetic anisotropies of the hole states in Stranski-Krastanov quantum dots. *Physical Review B*, 70(24) :241305+, December 2004.
- [207] R. Loudon. *The Quantum Theory of Light*. Oxford University Press, 1983.
- [208] Roy J. Glauber. Photon Correlations. *Physical Review Letters*, 10(3) :84–86, February 1963.
- [209] Roy J. Glauber. The Quantum Theory of Optical Coherence. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 130(6) :2529–2539, June 1963.
- [210] Roy J. Glauber. Coherent and Incoherent States of the Radiation Field. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 131(6) :2766–2788, September 1963.

- [211] R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss. Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light. *Nature*, 177(4497) :27–29, January 1956.
- [212] R. Hanbury Brown and R. Q. Twiss. The Question of Correlation between Photons in Coherent Light Rays. *Nature*, 178(4548) :1447–1448, December 1956.
- [213] X. T. Zou and L. Mandel. Photon-antibunching and sub-Poissonian photon statistics. *Physical Review A*, 41 :475–476, January 1990.
- [214] Alain Aspect, Philippe Grangier, and Gérard Roger. Experimental Tests of Realistic Local Theories via Bell’s Theorem. *Physical Review Letters*, 47(7) :460–463, August 1981.
- [215] Alain Aspect, Jean Dalibard, and Gérard Roger. Experimental Test of Bell’s Inequalities Using Time-Varying Analyzers. *Physical Review Letters*, 49(25) :1804–1807, December 1982.
- [216] Z. Y. Ou and L. Mandel. Violation of Bell’s Inequality and Classical Probability in a Two-Photon Correlation Experiment. *Physical Review Letters*, 61(1) :50–53, July 1988.
- [217] Charles H. Bennett and Gilles Brassard. Quantum cryptography : Public key distribution and coin tossing. *Proceedings of IEEE International Conference on Computers, Systems, and Signal Processing, Bangalore, India*, September 1984.
- [218] Artur K. Ekert. Quantum cryptography based on Bell’s theorem. *Physical Review Letters*, 67(6) :661–663, August 1991.
- [219] Charles H. Bennett, Gilles Brassard, Claude Crépeau, Richard Jozsa, Asher Peres, and William K. Wootters. Teleporting an unknown quantum state via dual classical and Einstein-Podolsky-Rosen channels. *Physical Review Letters*, 70(13) :1895–1899, March 1993.
- [220] D. Boschi, S. Branca, F. De Martini, L. Hardy, and S. Popescu. Experimental Realization of Teleporting an Unknown Pure Quantum State via Dual Classical and Einstein-Podolsky-Rosen Channels. *Physical Review Letters*, 80(6) :1121–1125, February 1998.
- [221] E. Knill, R. Laflamme, and G. J. Milburn. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature*, 409(6816) :46–52, January 2001.
- [222] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters*, 39(11) :691–695, September 1977.
- [223] Frank Diedrich and Herbert Walther. Nonclassical radiation of a single stored ion. *Physical Review Letters*, 58(3) :203–206, January 1987.
- [224] *A one-atom laser in a regime of strong coupling*, OSA Technical Digest (CD). Optical Society of America, October 2003.

- [225] B. Darquie, M. P. A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier. Controlled Single-Photon Emission from a Single Trapped Two-Level Atom. *Science*, 309(5733) :454–456, July 2005.
- [226] David C. Burnham and Donald L. Weinberg. Observation of Simultaneity in Parametric Production of Optical Photon Pairs. *Physical Review Letters*, 25(2) :84–87, July 1970.
- [227] C. K. Hong and L. Mandel. Experimental realization of a localized one-photon state. *Physical Review Letters*, 56 :58–60, January 1986.
- [228] T. Bashé, W. E. Moerner, M. Orrit, and H. Talon. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid. *Physical Review Letters*, 69(10) :1516–1519, September 1992.
- [229] Christian Brunel, Brahim Lounis, Philippe Tamarat, and Michel Orrit. Triggered Source of Single Photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence. *Physical Review Letters*, 83(14) :2722–2725, October 1999.
- [230] W. Patrick Ambrose, Peter M. Goodwin, Jörg Enderlein, David J. Semin, John C. Martin, and Richard A. Keller. Fluorescence photon antibunching from single molecules on a surface. *Chemical Physics Letters*, 269(3-4) :365–370, May 1997.
- [231] F. De Martini, G. Di Giuseppe, and M. Marrocco. Single-Mode Generation of Quantum Photon States by Excited Single Molecules in a Microcavity Trap. *Physical Review Letters*, 76(6) :900–903, February 1996.
- [232] B. Lounis and W. E. Moerner. Single photons on demand from a single molecule at room temperature. *Nature*, 407(6803) :491–493, September 2000.
- [233] F. Treussart, R. Alléaume, V. Le Floch, L. T. Xiao, J. M. Courty, and J. F. Roch. Direct Measurement of the Photon Statistics of a Triggered Single Photon Source. *Physical Review Letters*, 89 :093601+, August 2002.
- [234] Margaret A. Hines and Philippe Guyot-Sionnest. Synthesis and Characterization of Strongly Luminescing ZnS-Capped CdSe Nanocrystals. *J. Phys. Chem.*, 100(2) :468–471, January 1996.
- [235] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, and L. E. Brus. Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals. *Nature*, 383(6603) :802–804, October 1996.
- [236] G. Messin, J. P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, and M. Dahan. Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals. *Opt. Lett.*, 26(23) :1891–1893, December 2001.
- [237] Al and M. Rosen. Random Telegraph Signal in the Photoluminescence Intensity of a Single Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 78(6) :1110–1113, February 1997.

- [238] F. Cichos, C. Vonborczyskowski, and M. Orrit. Power-law intermittency of single emitters. *Current Opinion in Colloid & Interface Science*, 12(6) :272–284, December 2007.
- [239] Christian Kurtsiefer, Sonja Mayer, Patrick Zarda, and Harald Weinfurter. Stable Solid-State Source of Single Photons. *Physical Review Letters*, 85(2) :290–293, July 2000.
- [240] Rosa Brouri, Alexios Beveratos, Jean-Philippe Poizat, and Philippe Grangier. Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond. *Opt. Lett.*, 25(17) :1294–1296, September 2000.
- [241] A. Gruber, A. Dräbenstedt, C. Tietz, L. Fleury, J. Wrachtrup, and C. von Borczyskowski. Scanning Confocal Optical Microscopy and Magnetic Resonance on Single Defect Centers. *Science*, 276(5321) :2012–2014, June 1997.
- [242] A. Dräbenstedt, L. Fleury, C. Tietz, F. Jelezko, S. Kilin, A. Nizovtzev, and J. Wrachtrup. Low-temperature microscopy and spectroscopy on single defect centers in diamond. *Physical Review B*, 60(16) :11503–11508, October 1999.
- [243] A. Beveratos. *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés individuels dans le diamant ; application à la cryptographie quantique*. PhD thesis, Paris XI, 2002.
- [244] E. M Purcell. Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies. *Physical Review Online Archive (Prola)*, 69(1-2) :681, January 1946.
- [245] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, and V. Thierry Mieg. Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity. *Physical Review Letters*, 81(5) :1110–1113, August 1998.
- [246] B. Gayral, J. M. Gérard, B. Sermage, A. Lemaitre, and C. Dupuis. Time-resolved probing of the Purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks. *Applied Physics Letters*, 78(19) :2828–2830, 2001.
- [247] 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(18) :2865–2867, 2001.
- [248] Stuart J. Freedman and John F. Clauser. Experimental Test of Local Hidden-Variable Theories. *Physical Review Letters*, 28(14) :938–941, April 1972.
- [249] C. K. Hong and L. Mandel. Experimental realization of a localized one-photon state. *Physical Review Letters*, 56 :58–60, January 1986.
- [250] P. Grangier, G. Roger, and A. Aspect. Experimental Evidence for a Photon Anti-correlation Effect on a Beam Splitter : A New Light on Single-Photon Interferences. *EPL (Europhysics Letters)*, 1(4) :173–179, July 2007.

- [251] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Physical Review Letters*, 59(18) :2044–2046, November 1987.
- [252] J. Bylander, I. Robert-Philip, and I. Abram. Interference and correlation of two independent photons. *The European Physical Journal D*, 22(2) :295–301, February 2003.
- [253] David Press, Stephan Gotzinger, Stephan Reitzenstein, Carolin Hofmann, Andreas Löffler, Martin Kamp, Alfred Forchel, and Yoshihisa Yamamoto. Photon Antibunching from a Single Quantum-Dot-Microcavity System in the Strong Coupling Regime. *Physical Review Letters*, 98(11) :117402+, March 2007.
- [254] S. Ates, S. M. Ulrich, S. Reitzenstein, A. Löffler, A. Forchel, and P. Michler. Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity. *Physical Review Letters*, 103(16) :167402+, October 2009.
- [255] B. Bellomo, G. Compagno, R. Lo Franco, A. Ridolfo, and S. Savasta. Entanglement dynamics of two independent cavity-embedded quantum dots. *Physica Scripta*, 2011(T143) :014004+, February 2011.
- [256] S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaitre, I. Sagnes, I. Robert Philip, and I. Abram. Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot. *Physical Review B*, 72(4) :041303+, July 2005.
- [257] S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaitre, I. Sagnes, F. Raineri, A. Levenson, I. Robert Philip, and I. Abram. Indistinguishable single photons from a single-quantum dot in a two-dimensional photonic crystal cavity. *Applied Physics Letters*, 87(16) :163107+, 2005.
- [258] M. Larqué, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Entangling single photons on a beamsplitter. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 47(1) :119–125, April 2008.
- [259] G.D. Mahan. *Many-Particle Physics*. Kluwer Academic, 1990.
- [260] I. K. Oh, Jai Singh, A. Thilagam, and A. S. Vengurlekar. Exciton formation assisted by LO phonons in quantum wells. *Physical Review B*, 62 :2045–2050, July 2000.
- [261] J.L. Basdevant. *Mécanique quantique*. Ellipse, 1986.
- [262] R.R. Puri. *Mathematical Methods of Quantum Optics*. Springer, 2001.
- [263] B. Krummheuer, V. M. Axt, and T. Kuhn. Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195313+, May 2002.

- [264] I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. Ram R. Mohan. Band parameters for III–V compound semiconductors and their alloys. *Journal of Applied Physics*, 89(11) :5815–5875, 2001.

Résumé :

Le but de cette thèse a été de mettre en évidence la possibilité d'utiliser des boîtes quantiques semi-conductrices comme support à la réalisation de bits quantiques, briques élémentaires de l'information quantique. Nous avons ainsi démontré la possibilité de définir un système à deux niveaux, dont l'initialisation et le contrôle est réalisable au moyen d'impulsions lumineuses picosecondes et déterminé le temps durant lequel nous étions en mesure de conserver sa cohérence. Les oscillations de Rabi entre niveau fondamental et niveau excité permettent d'initialiser le système dans une superposition cohérente pouvant être ensuite manipulée par une deuxième impulsion au cours d'expériences de contrôle cohérent. Le temps de cohérence T_2 du système n'est pas seulement limité par la durée de vie radiative T_1 et reste très inférieur à la valeur théorique $T_2 = 2 T_1$. Les différents mécanismes de décohérence entrant en jeu ont dès lors été étudiés, en particulier le rôle des phonons acoustiques, responsables d'un fort amortissement des oscillations de Rabi et d'une diminution du temps de cohérence pour une partie des boîtes quantiques étudiées. Nous avons cependant dans certains cas mis en évidence la présence de mécanismes supplémentaires, liés aux fluctuations de l'environnement électrostatique des boîtes. Par ailleurs, une étude poussée de la polarisation de la luminescence émise par ces boîtes, dont la croissance a été réalisée en régime Stranski-Krastanov, a révélé une inclinaison des états propres de la structure fine de l'exciton, ainsi qu'une modification de leur intensité d'émission, témoignant d'un fort mélange des états lourds et légers de la bande de valence.

Mots clés : boîte quantique, exciton, oscillations de Rabi, contrôle cohérent, micro-photoluminescence, guide d'onde

Abstract :

The aim of this thesis was to highlight the possibility of using semiconductor quantum dots as the realization of quantum bits, building blocks of quantum information. We have demonstrated the feasibility of establishing a two-level system, which can be initialised and controlled using picosecond light pulses and then determined the time during which we were able to maintain its coherence. Rabi oscillations between the ground state and the excited level allow us to initialize the system in a coherent superposition which can then be manipulated by a second pulse in coherent control experiments. The system coherence time T_2 is not only limited by the radiative lifetime T_1 and remains well below the theoretical value $T_2 = 2T_1$. Different mechanisms of decoherence taking place were therefore studied, in particular the role of acoustic phonons, responsible of a strong Rabi oscillations damping and a decrease of the coherence time for some of the quantum dots studied. However, in some cases we found proof of additional mechanisms related to the dots fluctuating electrostatic environment. In addition, a detailed study of dots emission polarization showed a tilt of eigenstates of the fine structure of the exciton, as well as a modification of their emission intensity, indicating a strong mixing in the valence band, between heavy holes and light holes.

Keywords : quantum dot, exciton, Rabi oscillations, coherent control, microphotoluminescence, waveguide