



**HAL**  
open science

# Excitation résonante de boîtes quantiques pour la génération d'états non-classiques de la lumière

Leonard Monniello

► **To cite this version:**

Leonard Monniello. Excitation résonante de boîtes quantiques pour la génération d'états non-classiques de la lumière. Optique [physics.optics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2015. Français. NNT : 2015PA066052 . tel-01146982v1

**HAL Id: tel-01146982**

**<https://theses.hal.science/tel-01146982v1>**

Submitted on 29 Apr 2015 (v1), last revised 20 May 2015 (v2)

**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.

Thèse de Doctorat de  
l'Université Pierre et Marie Curie

Ecole Doctorale 564 : Physique en Ile-de-France

# Excitation résonante de boîtes quantiques pour la génération d'états non-classiques de la lumière

Présentée par

**Léonard Monniello**

Soutenue publiquement le 19 janvier 2015

devant le jury composé de :

M.	CASSABOIS	Guillaume	Rapporteur
Mme.	DELEPORTE	Emmanuelle	Examinatrice
M.	HOSTEIN	Richard	Membre invité
M.	MARIE	Xavier	Rapporteur
M.	RAIMOND	Jean-Michel	Examineur
Mme.	SENEILLART	Pascale	Examinatrice
Mme.	VOLIOTIS	Valia	Directrice de Thèse



A mon grand père

*"Il y a des moments où tout réussit. Il ne faut pas s'effrayer, ça passe."*  
Jules Renard

# Remerciements

Je souhaiterais tout d'abord remercier l'ensemble des personnes qui m'ont fait l'honneur de participer à mon jury de thèse : Jean-Michel Raimond qui a présidé mon jury de thèse ; Guillaume Cassabois et Xavier Marie pour avoir accepté le rôle de rapporteur ainsi qu'Emmanuelle Deleporte et Pascale Senellart pour avoir complété ce jury.

Cette thèse s'est déroulée à l'Institut de Nanoscience de Paris, dirigé par Bernard Perrin qui a su construire un environnement scientifique de premier plan. Je remercie également l'Université Pierre et Marie Curie et l'école doctorale ED 107, devenue 564 de m'avoir permis de réaliser cette thèse.

Je suis arrivé au laboratoire pour mon stage de Master 2. A l'époque j'avais déjà une expérience dans le domaine des boîtes quantiques acquise au LPN pendant mon stage de licence. J'y avais fait la connaissance de Richard Hostein qui finissait alors sa thèse. C'était ma première rencontre avec la recherche expérimentale et elle fut bonne. J'avais pu réaliser mon premier alignement d'optique avec plus de deux miroirs devant moi, mes débuts dans la cryogénie, mais surtout mes premières données à traiter. J'ai failli oublier la bonne ambiance. Pourtant tu as été moteur de cette ambiance, toujours attentif à mes questions, remarques (parfois déplacées), et tu as toujours eu le mot pour rire pour y répondre. Au final il faut croire que ça m'a plut. Lorsque j'ai vu que tu proposais un stage de Master 2, je n'ai pas hésité une seconde, je voulais retravailler avec toi. Quatre ans après je ne le regrette pas. Tu as continué à beaucoup m'apprendre, et toujours dans la bonne humeur qui te caractérise. Je te remercie chaleureusement pour tout ce temps passé en ta compagnie et pour ta patience quand il en a fallu... et il en a fallu.

Je voudrais continuer mes remerciements avec Valia Voliotis qui a dirigé ma thèse, mais qui a été pour moi plus qu'une directrice. Tu as été là pour répondre à mes questions et m'aiguiller quand j'en avais besoin. Sans toi, un certain nombre de résultats ne seraient pas dans ce manuscrit, car tu as été un moteur pour l'ensemble du travail de l'équipe. Et tu as réussi à m'accompagner malgré les heures d'enseignement. Ton organisation a été pour moi un modèle, difficile à suivre, mais un modèle tout de même. Il faut dire que je pars de loin. J'admire également ta patience quand il a fallu

me relire, et me rere lire, qu'il s'agisse des articles ou de ce manuscrit. Enfin je voudrais finir en disant que ces remerciements ne sont pas exactement ce que j'avais en tête il y a deux ans. A l'époque nous avons essayé de faire quelques cours de grec, et je me voyais déjà t'écrire un petit paragraphe, une phrase peut être. Je me contenterai donc du minimum :  $\sigma\epsilon\ \epsilon\upsilon\chi\alpha\rho\iota\sigma\tau\omega\ \pi\omicron\lambda\upsilon$

Je continue naturellement mes remerciements avec Roger Grousseau. J'ai eu la chance pendant ma thèse d'avoir trois encadrants. Enfin la chance... parfois c'est dur de satisfaire aux exigences de tous. Mais avec toi, travailler était un plaisir au quotidien. Si Valia et Richard ont été moteurs, tu as été l'essence. C'est toi qui, tous les matins, venait me redonner l'envie de m'enfermer pendant huit heures dans le noir, pour compter les photons d'une hypothétique boîte quantique qu'on ne trouverait, ou retrouverait, peut-être pas. Même si j'aurais bien aimé avoir quelques jours de plus pour traiter certaines données, ces journées passées en salle de manip ont permis d'en arriver là. Tu as été un compagnon d'expérience, une oreille attentive, et une aide précieuse quand il fallait décider de l'expérience suivante, ou quand il fallait résoudre un problème optique. Ces résultats sont aussi les tiens. Tu t'es entêté à nous expliquer le couplage au guide et j'ai toujours voulu y croire. J'espère que tu seras satisfait de ce que j'en ai fait. Enfin, je n'oublierai jamais ton enthousiasme face à du matériel d'optique dont plus personne n'aurait voulu, mais qui nous a sorti quelques fois de situations difficiles. A vouloir tout garder, on garde forcément des choses intéressantes.

Je fini les remerciements concernant l'équipe par Antoine Reigue. Après ton stage avec nous il y a maintenant presque deux ans et ton début de thèse cette année, je regrette de ne pas pouvoir plus travailler avec toi. Ta bonne humeur, ta motivation et ta curiosité sont communicatives. J'espère que j'aurai le plaisir de retravailler avec toi plus tard.

Un grand merci à Monique Combescot pour son aide précieuse pour la modélisation quantique de notre système. Il est difficile de poser le bon hamiltonien et de le résoudre astucieusement lorsque, comme moi, on n'en a pas l'habitude. Tu l'as fait avec pédagogie et tu m'as appris beaucoup de choses. Je regrette que nous n'ayons pas pu aller jusqu'où nous l'aurions souhaité.

Je voudrais remercier particulièrement les amis et collègues du bureau 209 Bruno Siarry et Sylvain Shihab. On ne travaille pas vraiment sur le même sujet, mais nous nous sommes soutenus dans la « franche camaraderie » qui nous a caractérisés depuis bientôt trois ans. Les nombreuses vannes et boutades ont toujours eu été dites et perçues avec humour, et c'est avec regret que je quitte ce bureau. L'ambiance n'était pas propice au travail rigoureux, mais il permettait de faire des pauses dignes de ce nom. Sans oublier les parties d'échec le midi (Bruno, j'aurais bien aimé te laisser gagner aux échecs, mais je n'ai jamais réussi), et les gouters riches en chocolat et matières grasses.

Maintenant c'est à vous de commencer la rédaction de la thèse, bon courage !

Merci également à Benoit Eble qui, depuis le bureau d'à coté, a été une oreille attentive quand j'en avais besoin. Toujours là pour répondre aux questions sur les charges ou pour discuter des modélisations. Une oreille attentive mais un oeil critique, c'était idéal pour progresser dans la compréhension des phénomènes observés.

Je tiens à remercier Mathieu Bernard, qui nous a sorti de beaucoup de problèmes cryogéniques ou juste techniques et nous a permis d'avancer dans nos recherches.

Je souhaite également remercier Sophie Hameau pour son aide pour mes heures d'enseignement, notamment son soutien moral quand il a fallu supporter les étudiants.

Je voudrais enfin remercier l'ensemble de l'équipe Nanost : Catherine Gourdon, Laura Thevenard, Florent Margaillan, Christophe Testelin, Maria Chamarro, Patricio Grinberg, Frédéric Bernardot, Andrey Pankratov, François Dubin, Romain Anankine, Mussie Beian, Matthieu Alloing, Michel Schott, Laurent Legrand, Thierry Barisien, Bernard Jusserand, Florent Perez et Florent Baboux, (j'espère n'avoir oublié personne) ainsi que toutes les personnes déjà mentionnées, pour l'ambiance générale de travail et les moments de détente, tels que les repas le midi. Sans oublier les rendez-vous à la cafet, partagés avec tout le deuxième étage et convoités par l'ensemble du laboratoire. Merci à vous tous.

Je tiens à remercier chaleureusement Silbe Majrab et Francis Breton pour leurs prouesses en électronique.

Je remercie également le service administratif du laboratoire et notamment Valerie Guezo, Nathalia Balabanova, Stephanie Lagarde et Cecile Dufflot. Merci aussi au service informatique.

Au cours de ces années, j'ai eu le plaisir de travailler avec des personnes d'autres laboratoires, notamment avec l'équipe de Carole Diederichs que je remercie chaleureusement. J'ai eu le plaisir de partir en conférence avec Raphaël Proux et Maria Maragkou, qui m'ont soutenu avant et pendant mes présentations qu'elles soient orales ou pendant les sessions poster. Merci également à Aristide Lemaître et Anthony Martinez pour la réalisation de nos échantillons.

Un retour aux sources s'impose, et je remercie Isabelle Robert-Philip et Alexios Beveratos qui m'avaient encadré pendant mon stage de licence au LPN. Nous sommes restés en contact et nous nous sommes revus régulièrement autour d'un repas ou en conférence. Ces échanges ont toujours été fructueux et enrichissants. Isa, à chacune de nos discussions tu as été d'un grand soutien, merci beaucoup pour ça.

En arrivant aux remerciements plus personnels, je me dois de remercier très particulièrement David Elvira. Tu es avec moi depuis le début, et le LPN. Nous sommes restés amis, que ce soit sur un terrain de basket ou derrière un ordinateur, et nos discussions interminables le soir resteront dans ma mémoire. Nous resterons en contact, pour longtemps j'en suis sûr.

Je remercie aussi mes anciens et toujours amis de l'ENS. J'ai une pensée spéciale pour Dylan Cotta, Marien Simeni, Tom Kristensen et Simon Feat. Je remercie aussi tous les amis, pour qui la physique est lointaine ou obscure, et qui ont fait semblant de m'écouter. Toutes ces personnes qui m'ont permis de décompresser quand j'en avais besoin, autour d'un verre ou en vacances. Merci à Bobo, Max, Will et Hélène, Alex et Charlotte, Magda et Morgan. Merci aussi à Anne et bon courage pour la fin de ta thèse.

Merci à la coloc d'Antony devenue coloc de Massy. La bonne ambiance à fait qu'on s'y sent chez soi. Johanna, tu es devenue une soeur, tu le resteras. Ne change pas, enfin... sauf de chanson.

Un remerciement particulier à Aude qui m'a soutenue pendant cette dernière année difficile pour moi. Nous ne nous sommes pas rencontré au moment où j'avais le plus de temps de disponible mais malgré tout cette année à tes cotés à été merveilleuse. Je n'ai certainement pas été facile à vivre tous les jours, à avoir la tête dans les manip ou les calculs plutôt qu'avec toi. Je te remercie de m'avoir supporté et de m'avoir encouragé dans les moments où j'en avais besoin. J'ai énormément de chance de t'avoir. Merci infiniment, pour tous les moments que nous avons passés ensemble, et aussi pour tous les moments à venir.

Je remercie enfin très chaleureusement toute ma famille, particulièrement mes parents qui ont été un soutien infailible. Vous avez été présents pendant tout ce temps, à me supporter et me soutenir. Vous m'avez encouragé quand j'en avais besoin. Merci à mes soeurs, Helena et Lucie, pour leur joie et le bonheur qu'elles m'apportent. Je vous remercie aussi pour l'organisation du pot de thèse, qui a été grandiose.

# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>4</b>
<b>Introduction</b>	<b>10</b>
<b>1 Contexte général</b>	<b>15</b>
1.1 Quelques notions utiles . . . . .	15
1.2 Propriétés générales des boîtes quantiques d’InAs/GaAs . . . . .	23
1.3 Excitations électroniques dans les boîtes quantiques . . . . .	28
1.4 Émission de photons uniques et indiscernables par une boîte quantique	35
1.5 Conclusion . . . . .	38
<b>2 Caractérisation de boîtes quantiques uniques d’InAs/GaAs</b>	<b>41</b>
2.1 Dispositif expérimental . . . . .	41
2.2 Caractérisation des boîtes quantiques . . . . .	59
2.3 Conclusion . . . . .	73
<b>3 Étude des boîtes quantiques à la résonance</b>	<b>75</b>
3.1 Observation d’une boîte unique à la résonance . . . . .	76
3.2 Interaction lumière-matière : approche semi-classique . . . . .	82
3.3 Couplage aux phonons acoustiques . . . . .	92
3.4 Modification de la durée de vie à la résonance . . . . .	102
3.5 Influence de la cavité sur les propriétés d’émission des boîtes . . . . .	111
3.6 Interaction lumière-matière : Approche quantique . . . . .	112
3.7 Commentaires et Conclusion . . . . .	122
<b>4 Photons uniques indiscernables à la demande</b>	<b>127</b>
4.1 Fonction de corrélation du premier ordre . . . . .	128
4.2 Fonction de corrélation du second ordre . . . . .	132
4.3 Caractérisation d’une source de photons indiscernables . . . . .	136
4.4 Modélisation des expériences . . . . .	141
4.5 Résultats expérimentaux . . . . .	147
4.6 Conclusion . . . . .	151

<b>5</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>153</b>
5.1	Conclusions . . . . .	153
5.2	Perspectives . . . . .	154

# Introduction

De nos jours l'information quantique est une thématique importante dans le domaine des nanosciences [1]. Pour d'éventuelles applications mais aussi pour des expériences d'optique quantique fondamentale [2], il est nécessaire d'avoir des sources de photons uniques fiables. Ainsi en cryptographie quantique [3, 4, 5], il est essentiel d'assurer la transmission de l'information de manière parfaitement sécurisée et pour cela les sources de photons uniques émis à la demande sont indispensables.

Cependant, un défi important pour obtenir une source de photons uniques efficace est d'augmenter la probabilité de détecter un photon par cycle d'excitation. Cette probabilité dépend aussi bien des propriétés de l'émetteur que de l'efficacité d'extraction du dispositif optique.

La construction de portes logiques quantiques constitue par ailleurs une autre voie de recherche en information quantique [6]. Elle impose que les photons utilisés soient indiscernables. Ils ont alors même énergie, même polarisation et même profil spectral/temporel [7]. En utilisant un unique émetteur, le degré d'indiscernabilité des photons est limité par le profil spectral et les propriétés de cohérence de l'émetteur. Les protocoles d'information quantique sont très sensibles aux fluctuations de l'environnement autour de l'émetteur, caractérisées par un temps de cohérence pendant lequel cette information est préservée.

L'idée la plus simple pour réaliser de telles sources est d'utiliser l'émission d'un système quantique à deux niveaux. De nombreux systèmes ont été étudiés tels que les atomes [8], les ions [9], les jonctions supraconductrices [10]... l'avantage des systèmes en matière condensée étant leur possible intégration dans des dispositifs.

Les boîtes quantiques semiconductrices sont rapidement apparues comme des systèmes modèles en matière condensée pour réaliser des bits quantiques [11]. Le confinement spatial à trois dimensions des porteurs de charge (électron ou trou) réalisé grâce à la dimensionnalité réduite de ces nanostructures, conduit à une discrétisation du spectre d'énergie, similaire à celui des atomes. Cela a été observé en microphotoluminescence sur boîtes uniques dans les années 1990 [12]. Les études sur l'émission de photons uniques ont suivi quelques années plus tard [13, 14], démontrant ainsi que les boîtes quantiques sont des émetteurs de photons uniques performants. Puis, plus récemment, on a pu créer de manière résonante une excitation électronique, à l'aide d'un laser continu [15], puis à l'aide d'impulsions lumineuses [16], et ainsi démontrer la

possibilité d’initialiser, contrôler et manipuler un qubit dans une boîte quantique, c’est-à-dire, coder, lire et transmettre une information sur des états quantiques. Cependant, les interactions entre une boîte et son environnement apportent de nombreuses difficultés. Notamment, le système perd très vite sa cohérence [17], et ainsi l’information qu’il contient. De nombreuses équipes se sont penchées sur les questions de cohérence des boîtes quantiques, afin d’en comprendre la nature et de réduire les effets de la décohérence [18]. L’excitation résonante est une des clés permettant de préserver la cohérence.

L’objectif de ma thèse a donc été d’aborder les problèmes de cohérence de la source, d’un point de vue fondamental, mais aussi de réaliser un dispositif optique optimisé de source à photons uniques et indiscernables. Pour cela, nous nous sommes attachés à améliorer les propriétés d’émission de la source (taux d’émission, temps de cohérence) et proposer de nouvelles structures d’échantillons, afin d’augmenter l’efficacité d’extraction de l’ensemble du dispositif. L’originalité réside dans les études sous excitation résonante des boîtes quantiques, études menées déjà depuis quelques années dans le groupe et qui ont déjà donné lieu à trois thèses [19, 20, 21].

Dans les travaux qui ont précédé cette thèse, il a été montré que l’étude à la résonance de boîtes quantiques uniques est rendu possible grâce à une géométrie d’optique guidée [16], permettant de découpler spatialement le laser d’excitation de la luminescence collectée. Dans le régime d’oscillation de Rabi, on peut inscrire et contrôler un bit quantique grâce à des expériences de contrôle cohérent [22], réalisées à l’aide de deux impulsions dont on contrôle le retard et la phase relative. Cette expérience permet également de mesurer la cohérence du système.

A la suite de ces travaux, il était nécessaire de réaliser un dispositif expérimental permettant de mesurer la statistique d’émission des photons ainsi que leur cohérence. Un de mes premiers objectifs a consisté à l’élaboration d’une expérience de corrélation de photons de type Hanbury-Brown and Twiss [23], permettant la mesure d’unicité des photons. Par la suite, j’ai fait évoluer ce dispositif, afin de pouvoir l’utiliser pour des expériences de spectroscopie à transformée de Fourier, permettant d’avoir accès précisément à la largeur des raies d’émission. Enfin, la réalisation d’une expérience de coalescence de photons, appelée Hong-Ou-Mandel [24], d’abord en espace libre puis entièrement fibrée, m’a permis de mesurer le degré d’indiscernabilité des photons.

Dans le premier chapitre, nous aborderons des notions utiles pour comprendre l’étude réalisée. Après avoir introduit quelques notions d’optique quantique nous aborderons les propriétés de confinement des porteurs de charge dans les semiconducteurs, et en particulier dans une boîte quantique. Les états d’énergie discrets des paires électron-trou liées par le confinement, permettent de définir le système à deux niveaux qui sera un émetteur de photons uniques. Les propriétés d’émission et de cohérence seront enfin discutées, avant de présenter différentes stratégies pour la génération de photons uniques indiscernables.

Le second chapitre sera consacré au montage expérimental, ainsi qu’à la carac-

térisation des boîtes quantiques sous excitation non-résonante. Ce montage est utilisé depuis la thèse de R. Melet (2004). Il a fait l'objet d'améliorations permanentes au cours des thèses qui ont suivi. Différentes mesures peuvent être réalisées telles que la luminescence résolue en polarisation, les corrélations des photons émis, qui permettent de caractériser complètement la nature de l'état du système (exciton neutres ou chargés) ainsi que la statistique d'émission (source de photons uniques).

Dans le troisième chapitre, nous nous concentrerons sur le régime particulier de l'excitation résonante. Dans ce régime, les boîtes se couplent fortement au champ électrique de l'impulsion laser, et on observe des oscillations de Rabi. Ces oscillations sont la preuve de l'écriture d'un bit quantique dans le système à deux niveaux. Avec une excitation résonante, on préserve la cohérence du système, mais on montre également que de nouveaux couplages apparaissent (couplage résonant aux phonons, couplage résonant au mode 1D des guides d'onde), détériorant à nouveau la cohérence du système à deux niveaux.

Dans le quatrième chapitre, on s'intéressera aux propriétés d'émission des photons sous excitation résonante, et notamment à l'émission de photons indiscernables à la demande. Nous définirons les mesures de corrélation du premier et du deuxième ordre pour une source quantique en interaction avec son environnement. Nous montrerons enfin par une mesure de Hong-Ou-Mandel, que les boîtes quantiques sont de bons émetteurs de photons uniques indiscernables. Cette dernière mesure contredit les mesures de temps de cohérence faites indépendamment par des mesures de corrélation du premier ordre de la luminescence, ce qui nous a amené à nous interroger sur la nature de la mesure du temps de cohérence.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre dresse les conclusions générales ainsi que les perspectives de ce travail.



# Chapitre 1

## Contexte général

L'idée d'utiliser les photons uniques pour des applications a émergé vers les années 1990. La principale voie de recherche s'est tournée vers les protocoles de cryptographie quantique permettant d'échanger des clés chiffrées avec une sécurité maximale, ainsi que vers les relais quantiques, permettant de transmettre l'information sur de longues distances. Aujourd'hui, de nombreux groupes travaillent sur ce sujet, avec des systèmes très variés : ions ou atomes, molécules, centres colorés du diamant, jonctions supraconductrices, boîtes quantiques... Tous ces systèmes présentent une structure électronique avec des niveaux d'énergie discrets, et peuvent être utilisés comme des sources de photons uniques.

Dans ce chapitre, nous introduirons dans un premier temps quelques notions de base de l'information quantique : les bits quantiques dont nous donnerons un exemple d'utilisation, les sources de photons uniques et la notion d'indiscernabilité. Nous définirons ensuite le système d'étude de cette thèse, les boîtes quantiques d'InAs/GaAs, et nous présenterons le système à deux niveaux étudié pour lequel l'état de base est la boîte vide et l'état excité est la boîte contenant une paire électron-trou.

### 1.1 Quelques notions utiles

#### 1.1.1 Un bit quantique

En information classique, l'information est codée sous forme de 1 et de 0, que l'on nomme *bit*. Ces bits sont comparables à des circuits électriques (figure 1.1 (a)) : 1 le circuit est fermé et la lampe est allumée ; 0 le circuit est ouvert la lampe est éteinte. Une succession de 0 et de 1 code alors une séquence où la lampe est successivement éteinte ou allumée. Avec la bonne clé de déchiffrement (code morse ou ASCII par exemple), on peut alors transcrire une série de bits en un message intelligible.

En information quantique, la notion de bit existe toujours mais on parle de *qubit*, pour "quantum bit". Tout comme son équivalent classique, un qubit est défini

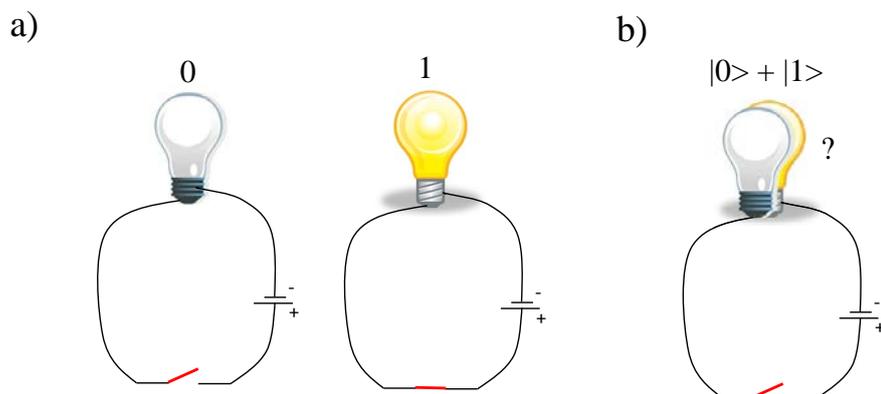


FIGURE 1.1 – a) Schématisation des bits classiques par un circuit électrique ouvert ou fermé. b) Cette schématisation n'a pas son équivalent quantique où l'ampoule serait à la fois allumée et éteinte dans le cas d'un état superposé  $|0\rangle + |1\rangle$ .

à partir d'un système à deux niveaux qu'on note  $|0\rangle$  ou  $|1\rangle$ . Cependant, à la différence des bits classiques, les qubits peuvent également se trouver dans une superposition de  $|0\rangle$  et de  $|1\rangle$ , par exemple dans l'état  $|\psi\rangle$  :

$$|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle \quad (1.1)$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  sont deux nombres complexes et obéissent à la condition de normalisation  $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$ . On dit alors que le qubit est un état superposé de  $|0\rangle$  et de  $|1\rangle$ . Contrairement à la mécanique classique, cette superposition ne signifie pas un "ou" mais un "et" : l'état est à la fois  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ , avec un poids respectif  $\alpha$  et  $\beta$ .

Cette superposition d'états est incompatible avec le monde classique (figure 1.1 (b)), mais ce problème est résolu par la notion de mesure quantique : lorsqu'on fait une mesure d'une observable physique, l'état du système est projeté sur un état propre de l'opérateur associé. Par exemple, dans la base  $(|0\rangle, |1\rangle)$ , le résultat de la mesure sera soit 0 avec une probabilité  $|\alpha|^2$  soit 1 avec une probabilité  $|\beta|^2$ . Si on a mesuré 0, alors après la mesure l'état du qubit sera  $|0\rangle$ . Il est important ici de noter qu'en mécanique quantique, l'état et son évolution sont déterministes, seule sa mesure est probabiliste.

Comme la mécanique quantique autorise la superposition d'états, elle permet la mesure sur une base différente de la base d'origine. Prenons par exemple la base composée des vecteurs  $|+\rangle = (|0\rangle + |1\rangle)/\sqrt{2}$  et  $|-\rangle = (|0\rangle - |1\rangle)/\sqrt{2}$ . L'état s'écrit alors :

$$|\psi\rangle = \frac{\alpha + \beta}{\sqrt{2}}|+\rangle + \frac{\alpha - \beta}{\sqrt{2}}|-\rangle \quad (1.2)$$

La mesure sur cette base donne à nouveau un résultat probabiliste, avec des probabilités

différentes. Une fois la mesure effectuée, la mécanique quantique prévoit que l'état soit projeté sur l'état propre correspondant à la mesure, c'est-à-dire que si le résultat de la mesure est  $+$ , alors après la mesure  $|\psi\rangle = |+\rangle$ . Si maintenant on effectue la mesure sur cet état dans la base initiale, la probabilité de mesure sera donnée par l'état  $|+\rangle$ , c'est à dire qu'il y aura 50% de chance de trouver 1 et 50% de trouver 0.

Les autres propriétés importantes des qubits (ou des états quantiques en général) sont [25] :

- Théorème de non-clonage : Il est impossible de dupliquer un état quantique de manière absolue. Soit il est nécessaire de détruire l'état que l'on souhaite dupliquer, soit l'état est reproduit avec des incertitudes.
- Un état à plusieurs qubits peut être intriqué ou factorisé. Un état classique sera toujours factorisé, c'est-à-dire que la mesure d'un bit ne donne pas d'information sur la nature de l'autre bit. En revanche, un état quantique peut être intriqué : la mesure de l'état d'un qubit projette l'autre qubit dans un état déterminé, et cela peu importe la base de la mesure.

### 1.1.2 Utilisation des bits quantiques pour l'information quantique

Ces propriétés des bits quantiques permettent de mettre au point des protocoles pour l'information quantique. Les plus couramment cités sont la simulation quantique [26] et la cryptographie quantique [3].

Pour la simulation quantique, on utilise le caractère probabiliste de la mesure quantique. Ainsi, un système quantique permettra de simuler avec une fidélité maximale une suite d'événements aléatoires, alors que les protocoles classiques de génération de nombres aléatoires sont souvent "pipés" (il est possible de prédire le prochain nombre généré si on connaît les précédents).

La cryptographie quantique consiste à envoyer une clé de cryptage par un canal quantique. Cette clé servira ensuite à décrypter un message codé envoyé suivant un canal public. Les protocoles de cryptographie quantiques sont théoriquement inviolables par la nature même des bits quantiques. Nous allons détailler un exemple de protocole, le protocole BB84 [27] :

0. Alice et Bob veulent s'échanger des messages codés sans être espionnés par Eve (figure 1.2). Pour cela ils vont s'échanger une clé par un canal quantique. Alice choisit une clé composée de 0 et de 1.
1. Elle encode aléatoirement sa clé sur deux bases  $\{|0\rangle = 0, |1\rangle = 1\}$ , ou  $\{|+\rangle = 0, |-\rangle = 1\}$ .
2. Bob reçoit un certain nombre de qubits, et Alice et Bob vérifient qu'ils en ont bien le même nombre. Il mesure les qubits aléatoirement sur une des deux bases.
3. Alice annonce à Bob la base qu'elle a utilisée pour chaque qubit et ils éliminent toutes les mesures qui ont été faites sur des bases différentes.

4. Alice choisit un grand nombre de qubits dont elle annonce publiquement la valeur à Bob. S'ils ne trouvent pas la même valeur sur un nombre significatif de qubits, c'est qu'ils ont été espionnés. Le protocole est à refaire.
5. Alice et Bob peuvent maintenant communiquer publiquement, mais de manière cryptée, sans crainte que le message ne soit déchiffré par Eve.

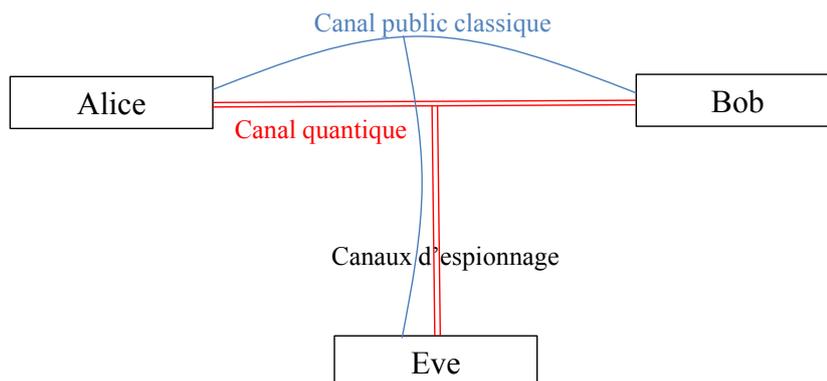


FIGURE 1.2 – Schématisation des canaux d'échange entre Alice et Bob. Eve est un espion qui essaye d'intercepter les communications.

Ce protocole repose sur la projection liée à la mesure et le non clonage. Eve ne connaît pas la base employée par Alice. Lorsqu'elle fera sa mesure, elle ne connaîtra le résultat que par rapport à la base utilisée, et ne pourra retransmettre l'information à Bob de manière certaine. Un certain nombre d'erreurs vont alors apparaître dans la clé, qui seront détectées lors du protocole.

Ce protocole peut être mis en oeuvre en utilisant la polarisation de la lumière. En effet, la polarisation de la lumière peut se représenter par un vecteur, qu'il est possible d'écrire dans plusieurs bases. On aura ainsi :

$$\begin{aligned} \uparrow &= \frac{1}{2}(\nearrow - \searrow) \\ \rightarrow &= \frac{1}{2}(\nearrow + \searrow) \end{aligned} \tag{1.3}$$

où les flèches représentent les différentes polarisations de la lumière utilisées par Alice, et réparties en deux bases :  $\{\uparrow; \rightarrow\}$  et  $\{\nearrow; \searrow\}$ . Comme nous allons le voir, Eve ne peut prédire dans quelle polarisation la lumière a été envoyée lors de sa mesure, à condition de travailler avec des photons uniques :

- Avec un nombre élevé de photons (source classique ou laser), Eve peut prélever une quantité négligeable de photons, qu'elle scinde encore en deux. Avec la

première moitié, elle pourra faire une première mesure. Si elle a choisi la bonne base de mesure, alors le résultat de la mesure sera soit 0 soit 1. Si la base est la mauvaise, le résultat de la mesure sera 1/2 et Eve pourra à nouveau mesurer la polarisation avec la seconde partie du faisceau. Eve connaît alors la base et le qubit envoyé par Alice, tout en laissant suffisamment de photons à Bob pour faire lui même la mesure.

- Avec des photons uniques, le résultat de la mesure d'Eve sera 0 ou 1 aléatoirement si elle est dans la mauvaise base, et 0 ou 1 si elle est dans la bonne base. Sa mesure ne lui donne qu'une information très partielle. Elle renvoie alors à Bob un photon dont la polarisation a une chance sur deux d'être dans la bonne base.

### 1.1.3 Notion de cohérence et d'indiscernabilité des photons

Pour certains protocoles d'information quantique, tels que la téléportation quantique, l'unicité des photons est nécessaire mais pas suffisante, et les photons doivent en plus être "identiques" ou indiscernables. Deux photons sont dits indiscernables s'ils ont même énergie, même polarisation et même profil spectral et temporel. De tels photons pourront être intriqués et l'état d'un des photons sera alors déterminé par l'état de l'autre.

Avec un unique système à deux niveaux, les photons émis auront même énergie, et la polarisation peut être contrôlée. En revanche, le profil temporel est fortement lié à l'interaction de ce système avec son environnement. Ainsi un atome froid isolé sera un émetteur de photons uniques indiscernables car il n'interagit pas avec son environnement. Par contre, les émetteurs solides tels que les nanocristaux ou les boîtes quantiques sont en interaction permanente avec leur environnement, notamment les phonons (vibration du réseau cristallin).

Lorsqu'un dipôle est excité, il oscille avec une pulsation  $\omega_0$ ,  $\hbar\omega_0$  étant l'énergie de l'état excité. Le temps pendant lequel cette oscillation reste en phase est appelé temps de cohérence et noté  $T_2$ . Pour un atome, ou tout autre système totalement isolé, on montre que le temps de cohérence est uniquement limité par la durée de vie radiative, notée  $T_1$ , et  $T_2 = 2T_1$  [28]. Lorsque le système est en interaction avec son environnement, cette interaction induit des sauts de phase aléatoires sur un temps caractéristique noté  $T_2^*$  appelé temps de déphasage pur [17]. Ce temps correspond à des processus ne modifiant pas l'énergie de la transition optique. Le temps de cohérence s'écrit alors :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (1.4)$$

et on voit que  $T_2 < 2T_1$ . L'écart au système idéal se mesure alors par le rapport  $T_2/2T_1$ . Nous verrons au chapitre 4 que ce rapport caractérise le degré d'indiscernabilité des photons émis par une source de photons uniques. Lorsque  $T_2 = 2T_1$  les photons sont indiscernables et le temps de cohérence est dit dans la limite radiative, ou limité

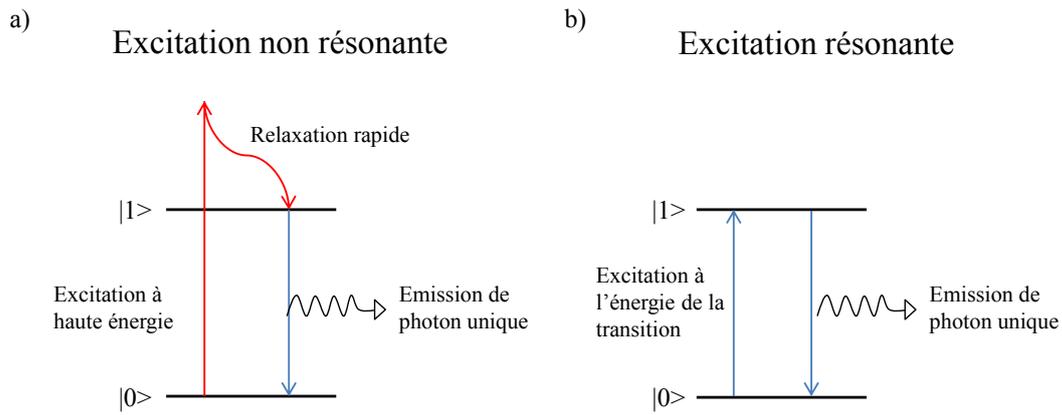


FIGURE 1.3 – Schéma de l'excitation d'un système à deux niveaux (a) à haute énergie et (b) à la résonance de la transition optique.

par transformée de Fourier car leur spectre est donné par la transformée de Fourier de leur profil temporel. Lorsque  $T_2 < 2T_1$  les photons présentent un certain degré d'indiscernabilité. Ce degré limite la fidélité des protocoles d'information quantique qui peuvent être réalisés avec les photons uniques.

#### 1.1.4 Différentes sources de photons uniques

Comme nous l'avons vu précédemment, pour réaliser les protocoles d'information quantique avec une efficacité et une fidélité maximum, il est important d'avoir des émetteurs de photons uniques. Les premières démonstrations de protocoles quantiques ont été réalisées avec des sources laser impulsionnelles atténuées, telles qu'une impulsion contienne en moyenne moins d'un photon [29]. Les photons sont émis par une source laser suivant une distribution de Poisson et les impulsions contiennent alors un nombre aléatoire de photons, avec une probabilité non nulle pour en avoir zéro ou plus de deux. Ceci pose des problèmes pour les différents protocoles. En effet si une majorité des impulsions ne contient pas de photon, alors aucune information ne peut être échangée, allongeant ainsi le temps nécessaire pour envoyer une clé cryptée. Avoir deux photons par impulsion implique que le protocole perd en sécurité. Il est donc nécessaire d'avoir des sources de photons uniques.

Pour générer des photons uniques il est nécessaire d'avoir un système à deux (ou trois) niveaux, avec un niveau fondamental et un (ou plusieurs) niveau excité. Un tel système peut être excité de deux manières principales (figure 1.3) :

- Le système peut être excité (par pompage optique ou électrique) à une énergie supérieure à celle de l'état excité. On appelle cette excitation "non résonante".

Il relaxe alors rapidement vers l'état excité. La probabilité pour que l'état excité relaxe vers l'état fondamental en émettant un photon est liée à  $1/T_1$ .

- Le système peut être excité directement à l'énergie de l'état excité. Cette excitation, dite résonante, a l'avantage de peupler directement l'état excité du système à deux niveaux et de s'affranchir de mécanismes de relaxation supplémentaires qui peuvent introduire de la décohérence.

## Atomes et ions

Les premières mesures de photons uniques ont été réalisées en 1977 par Kimble *et al.* [8]. Un jet d'atomes de sodium émet des photons dont on mesure la statistique au moyen d'une expérience de Hanbury-Brown et Twiss (voir chapitre 4). L'équipe a alors observé le phénomène de dégroupement de photons, démontrant qu'un photon unique arrivant sur une lame semi-réfléchissante ne peut être à la fois transmis et réfléchi. Dans cette première mesure expérimentale, la statistique du jet d'atomes faisait que plusieurs photons pouvaient être émis simultanément par plusieurs atomes, dégradant alors l'observation du dégroupement. A partir d'une expérience similaire, Grangier *et al.* ont observé en 1986 des interférences sur des photons uniques, démontrant le caractère quantique de la lumière [30].

En 1987, Diedrich *et al.* [9] ont montré que des ions uniques piégés sont émetteurs de photons uniques. Ces expériences nécessitent cependant le refroidissement et le piégeage des ions par laser, conduisant à un important dispositif expérimental délicat à mettre en oeuvre.

Malgré ces contraintes, les atomes et les ions restent aujourd'hui des systèmes modèles permettant de tester différents protocoles d'information quantique. [31, 32]

## Molécules

Les molécules ont été utilisées comme sources de photons uniques à partir des années 90. Il est en effet plus aisé d'isoler une molécule qu'un atome, et leurs propriétés chimiques sont bien connues. Cependant, le grand nombre de degrés de liberté des molécules rend leur piégeage à température ambiante difficile. Ce problème est contourné en les incorporant dans une matrice solide, qui est ensuite refroidie à l'hélium liquide afin d'en réduire les vibrations [33]. La première observation de dégroupement de photons sous excitation impulsionnelle a été réalisée en 1996 [34] avec une molécule d'Oxazine 720, piégée dans une micro-cavité.

L'inconvénient majeur des molécules est leur faible photo-stabilité. Lorsqu'elles sont excitées, elles peuvent se trouver dans des états métastables et ne plus être couplées à la lumière [35]. On parle alors de "clignotement", ou "blinking". De plus, les molécules peuvent subir des transformations chimiques irréversibles sous l'effet d'une excitation optique, et perdre définitivement leurs propriétés d'émission. On parle alors de "photo-blanchiment", ou "bleaching".

## Centres colorés du diamant

Les centres colorés du diamant sont des défauts dans la structure cristalline du diamant [36]. Ils sont principalement optiquement actifs dans le visible et le proche infrarouge. Ces centres colorés proviennent de la substitution d'un atome de carbone du réseau par un autre atome. Par exemple, pour les centre "NV", un atome d'azote (N) remplace un atome de carbone. Comme l'azote forme trois liaisons chimiques alors que le carbone en forme quatre, une des liaisons est manquante dans la structure cristalline, qui est appelée "vacance" (V).

Les centres colorés émettent des photons uniques à température ambiante [37, 38], et ont l'avantage de ne pas clignoter et de ne pas photo-blanchir. Des travaux ont démontré expérimentalement des protocoles de cryptographie quantique en utilisant ces centres optiquement actifs [39].

Cependant deux inconvénients apparaissent. Ces structures ont des temps de cohérence faibles à température ambiante, rendant l'émission de photons indiscernables impossible. A basse température, ces émetteurs ont cependant montré des propriétés de cohérence qui ont abouti récemment à l'observation d'interférences quantiques entre les photons émis par deux émetteurs [40]. De plus, les protocoles d'information quantique qu'il est possible de réaliser sont aussi affectés par le long temps de vie de ces systèmes, limitant la fréquence à laquelle les photons peuvent être émis (environs 10 MHz). L'étude récente des centre Si-V du diamant, a montré qu'il est possible d'émettre des photons avec une forte cohérence et avec des temps de vie courts [41].

## Nanocristaux semi-conducteurs colloïdaux

Les nanocristaux sont des boîtes quantiques réalisées par voie chimique [42]. Dans ces systèmes, un coeur sphérique de quelques nm constitué d'un matériau semi-conducteur est entouré par une coquille d'un autre semi-conducteur (CdSe/ZnS par exemple). Il a été démontré que ces structures émettent des photons uniques à température ambiante [43, 44, 45]. Cependant ces sources présentaient un fort clignotement, sur des temps longs, allant de quelques minutes à plusieurs heures. Cette instabilité posait un problème majeur pour l'utilisation de ces structures comme source de photons uniques. L'origine physique du clignotement est attribué à des effets Auger [46], qui ont pu être minimisés grâce à la réalisation de nouvelles structures coeur-coquille à forte épaisseur de coquille et à gradient de concentration de l'alliage de la coquille. Cette avancée a conduit à un regain d'intérêt pour les nanocristaux [47, 48].

## Boîtes quantiques semi-conductrices auto-organisées

La micro-photoluminescence de boîtes quantiques auto-organisées a été observée pour la première fois par J.Y Marzin en 1994 [12]. Ces boîtes se forment naturellement lors de la croissance d'un matériau semiconducteur de faible gap sur un substrat d'un autre matériau semiconducteur de plus grand gap, lorsque les paramètres de maille des

réseaux cristallins des deux matériaux sont différents. La taille nanométrique de ces structures dans les trois directions de l'espace conduit à un spectre d'énergie discret des états électroniques.

Ces structures présentent un certain nombre d'avantages par rapport aux autres structures présentées :

- Elles sont photo-stables et peuvent émettre des photons à des fréquences de l'ordre du GHz.
- Certains procédés de croissance sont industrialisables (MOCVD) et les matériaux utilisés permettent leur intégration dans des dispositifs optiques. On peut également exciter le système par pompage électrique.
- En fonction des matériaux utilisés, la longueur d'onde d'émission varie entre 700 nm et 2,2  $\mu\text{m}$ , ce qui en fait de bonnes candidates pour une large gamme d'utilisation, allant des télécommunications [49] à la détection de gaz [50].
- Le procédé de croissance permet également de les insérer dans des structures en cavité (miroirs de Bragg ou cristaux photoniques) pour augmenter encore la fréquence d'émission des photons et gagner en efficacité de collection.

Cependant ces structures présentent certains désavantages. Bien que quelques travaux aient démontré la possibilité d'étudier certains types de boîtes quantiques (InAsP/InP notamment) à température ambiante et à la température de l'azote liquide (77 K) [51, 52], il est nécessaire de refroidir les boîtes à une température inférieure à 20 K pour réduire les interactions avec les vibrations du réseau cristallin et préserver la cohérence du système. De plus le mode de croissance aléatoire rend la répétabilité des études délicates. De nouveaux modes de croissance de boîtes, localisées, peuvent permettre de pallier ce dernier problème. [53]

## 1.2 Propriétés générales des boîtes quantiques d'InAs/GaAs

### 1.2.1 Structure de bande des semiconducteurs

Dans un solide, le comportement des électrons peut être décrit au moyen de deux approximations : la première, dite de Born-Oppenheimer, considère les noyaux comme infiniment plus massifs que les électrons, et ils sont donc considérés comme immobiles. La seconde, dite de Hartree-Fock, considère que les électrons ne sont sensibles qu'au champ moyen créé par les autres électrons et les noyaux. Avec ces approximations, le hamiltonien caractérisant le déplacement de l'électron s'écrit :

$$H_0 = \frac{\vec{p}^2}{2m_e} + V(\vec{r}) \quad (1.5)$$

où  $V(\vec{r})$  est le potentiel vu par l'électron et possède les symétries du réseau cristallin. Les états propres solutions de ce hamiltonien sont les fonctions d'onde de Bloch :

$$\Phi_{n\vec{k}}(\vec{r}') = u_{n\vec{k}}(\vec{r}') e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}'} \quad (1.6)$$

où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde de l'électron et  $n$  est l'indice de bande. La fonction d'onde est caractérisée par une partie onde plane en  $e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}'}$  et une partie atomique  $u_{n\vec{k}}(\vec{r}')$  qui possède la périodicité du réseau. L'énergie propre correspondant à l'état  $\Phi_{n\vec{k}}(\vec{r}')$  est appelée  $E_{n\vec{k}}$  et ses variations en fonction de  $\vec{k}$  définissent la structure de bande du cristal.

Pour calculer cette structure de bande autour du point  $\vec{k} = 0$ , on utilise la méthode dite  $\vec{k}\cdot\vec{p}$  [54, 55].  $E_{n\vec{k}}$  s'obtient à partir d'un calcul perturbatif au second ordre :

$$E_{n\vec{k}} = E_{n0} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e} + \frac{\hbar^2}{m_e^2} \sum_{m \neq n} \frac{|\langle u_{n0}(\vec{r}') | \vec{k}\cdot\vec{p} | u_{m0}(\vec{r}') \rangle|^2}{E_{n0} - E_{m0}} \quad (1.7)$$

Ce calcul permet de définir la notion de masse effective,  $m_e^*$ , associée aux différentes bandes, telle que :

$$E_{n\vec{k}} \approx E_{n\vec{0}} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_e^*} \quad (1.8)$$

Les propriétés électroniques du matériau sont alors définies à partir de particules effectives, ou quasi-particules, dont la masse est donnée par  $m_e^*$ . La valeur de cette masse (tableau 1.4) donne la courbure de la bande (figure 1.5). La structure de bande peut alors être calculée avec ou sans contrainte dans InAs et GaAs [56, 57]. Seules quatre bandes seront prises en compte par la suite : les trois bandes de valence de plus haute énergie et la bande de conduction de plus basse énergie. Dans le matériau massif (figure 1.5 (a)), les trois bandes de valence sont partiellement dégénérées : le couplage spin-orbite fait que la bande  $\Gamma_7$  est à plus basse énergie que les bandes  $\Gamma_8$ . Dans un puits quantique (figure (b)), l'énergie de confinement dépend de la masse de la particule. Comme les masses des électrons des bandes  $\Gamma_{8,lh}$  et  $\Gamma_{8,hh}$  sont différentes, la dégénérescence entre ces deux bandes est levée.

Il est possible d'exciter un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Cette excitation a pour effet de laisser une vacance d'électron dans la bande de valence dont le nombre d'électrons passe de  $N$  à  $N - 1$ . Afin de ne pas considérer les interactions du système à  $N$  corps, problème difficile à résoudre, on peut montrer que les  $(N - 1)$  électrons de la bande de valence sont équivalents à une particule, le trou. Ses propriétés physiques telles que la masse effective, la charge, ou le spin sont de signe opposé à celles de l'électron. Le premier état excité du semiconducteur correspond alors à la création d'une paire électron-trou. Pour les notations à venir, nous noterons  $e$  (resp.  $h$ ) les indices des grandeurs se référant aux électrons de la bande de conduction (resp. aux trous de la bande de valence).

Bande d'énergie	masse effective
Bande de conduction $\Gamma_6$	$0,067 m_0$
Bande de trous lourds $\Gamma_{8,hh}$	$0,38 m_0$ ( $\parallel$ à $z$ )
Bande de trous légers $\Gamma_{8,lh}$	$0,082 m_0$ ( $\parallel$ à $z$ )

FIGURE 1.4 – Masse effective de l'électron et du trou pour différentes bandes de GaAs habituellement utilisées (voir figure 1.5).

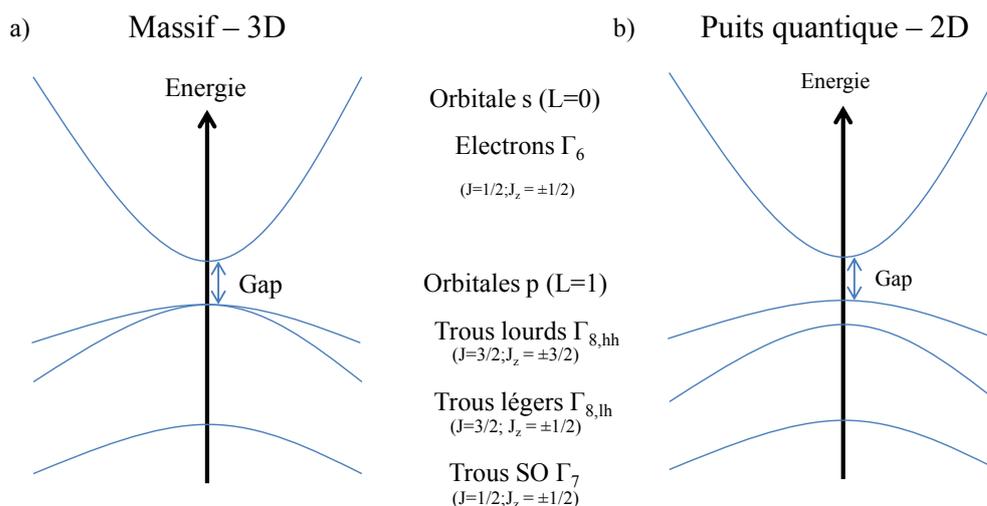


FIGURE 1.5 – Structure de bande des électrons de valence et de conduction pour un matériau massif (a) et un puits quantique (b).

### États des électrons et des trous en $k=0$

La bande de conduction  $\Gamma_6$  possède la symétrie d'une orbitale s. Les électrons dans cette bande ont donc un moment cinétique orbital  $L = 0$ . En prenant en compte le spin de l'électron  $S = 1/2$ , le moment angulaire total vaut  $J = 1/2$ , et en choisissant un axe de quantification suivant l'axe  $Oz$ , sa projection vaut  $J_z = \pm 1/2$ . Les états de l'électron dans la bande de conduction dans la base des  $|J, J_z\rangle$  peuvent donc s'écrire :

$$|e, \uparrow\rangle = \left| \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, \text{ et } |e, \downarrow\rangle = \left| \frac{1}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \quad (1.9)$$

La bande de valence  $\Gamma_8$  a elle une symétrie de type p, et  $L = 1$ . Les électrons (ou les trous) de la bande de valence ont alors un moment angulaire  $J = 3/2$  et quatre valeurs sont autorisées :  $J_z = \pm 1/2; \pm 3/2$ . La bande de valence  $\Gamma_{8,hh}$ , de moment total angulaire  $|J = 3/2, J_z = \pm 3/2\rangle$  a une masse effective supérieure à celle de la bande  $\Gamma_{8,lh}$ , de moment  $|J = 3/2, J_z = \pm 1/2\rangle$ . On les appelle pour cela bande de trous lourds ( $hh$  pour "heavy hole") et bande de trous légers ( $lh$  pour "light hole") respectivement. Les états de trous lourds s'écrivent :

$$|hh, \uparrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle, \text{ et } |hh, \downarrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle \quad (1.10)$$

et ceux de la bande de trous légers s'écrivent :

$$|lh, \uparrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, \frac{1}{2} \right\rangle, \text{ et } |lh, \downarrow\rangle = \left| \frac{3}{2}, -\frac{1}{2} \right\rangle \quad (1.11)$$

La bande  $\Gamma_7$  à un moment cinétique total  $J = 1/2$  avec deux projections autorisées  $J_z = \pm 1/2$ . Les états de la bande spin-orbite ont la même symétrie que ceux de la bande de conduction.

### 1.2.2 Confinement 0D des porteurs : discrétisation des états

Afin de créer un potentiel susceptible de confiner les porteurs, on réalise des hétérostructures, c'est-à-dire des empilements de couches de matériaux semiconducteurs de gap différents. Cette différence de gap crée un puits de potentiel dans la direction de l'empilement (voir figure 1.6 (a)). Cette modulation du potentiel confine les porteurs si la dimension caractéristique est inférieure à la longueur d'onde de De Broglie :

$$\lambda_{DB} = \sqrt{\frac{2\pi^2\hbar^2}{m_e^*k_B T}} \quad (1.12)$$

où  $T$  est la température du système, et  $k_B$  la constante de Boltzmann. Dans le GaAs, on trouve  $\lambda_{DB} \approx 5$  nm à température ambiante et  $\lambda_{DB} \approx 30$  nm à 7 K, température à laquelle nous réalisons nos expériences. Comme la taille caractéristique d'une boîte quantique est de l'ordre de 20 nm, les effets du confinement sont observables à température cryogénique.

L'apparition d'un potentiel de confinement suivant une direction de l'espace entraîne une discrétisation de la densité d'états électronique correspondante. Pour un potentiel de confinement à trois dimensions, on obtient un spectre électronique discret. La figure 1.6 illustre cette évolution :

- a) **En l'absence de confinement**, dans le matériau massif, les électrons possèdent trois degrés de liberté. Leur densité d'états est alors continue et proportionnelle à  $\sqrt{E - E_g}$ .
- b) **Avec un confinement suivant une direction**, on parle alors de puits quantique et les électrons possèdent deux degrés de liberté. La densité d'états présente des marches correspondant aux différents niveaux du puits.
- c) **Avec un confinement suivant deux directions**, on parle alors de fil quantique et les électrons n'ont plus qu'un degré de liberté. La densité d'états, caractéristique d'un système unidimensionnel, est proportionnelle à  $1/\sqrt{E - E_n}$  où  $E_n$  est

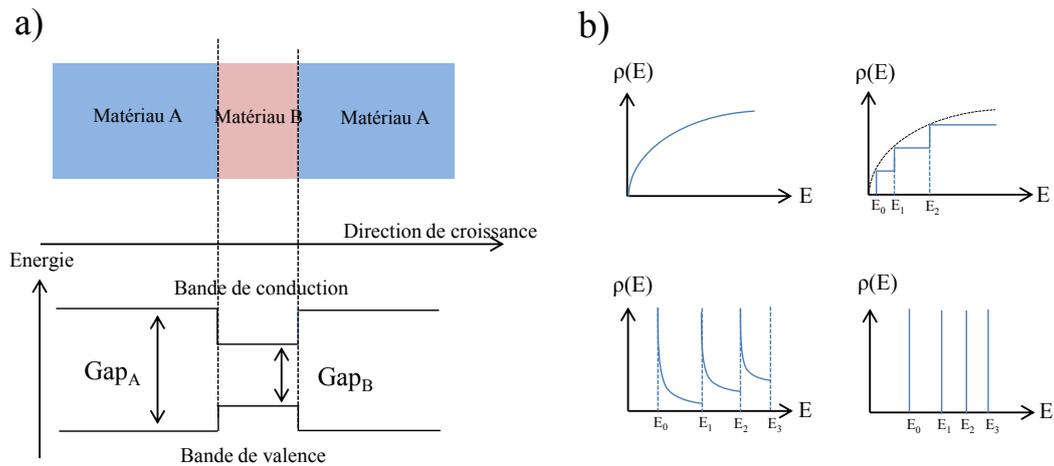


FIGURE 1.6 – a) Schéma d'un puits quantique, consistant en l'empilement de type A-B-A de deux matériaux semiconducteurs A et B de gap différent. b) Évolution de la densité d'états électronique en fonction de la dimension du confinement.

l'énergie de confinement.

- d) **Avec un confinement tridimensionnel**, on obtient une boîte quantique. Les électrons ne sont plus libres de se déplacer dans le matériau. La densité d'états ne forme plus un quasi-continuum mais une succession de pics de Dirac. On parle alors de macro-atomes ou atomes artificiels en raison de la similitude avec les niveaux d'énergie d'un atome isolé. L'apparition d'états discrets permet alors d'assimiler la boîte à un système à deux niveaux, où le niveau fondamental est la boîte sans paire électron-trou et le niveau excité est la boîte contenant une paire électron-trou.

### 1.2.3 Croissance des boîtes quantiques

Nous étudions des boîtes quantiques d'InAs/GaAs fabriquées par épitaxie à jets moléculaires (EJM) au Laboratoire de Photonique et Nanostructure (LPN) de Marcoussis par Aristide Lemaître. Au cours de la croissance d'une couche d'InAs sur du GaAs, des contraintes apparaissent aux interfaces des deux matériaux, en raison de la différence de paramètre de maille ( $a_{InAs} = 1,07a_{GaAs}$ ). Ce mode de croissance, appelé Stranski-Krastanov [58], se résume en trois étapes (fig 1.7) (a)

1. Une couche d'InAs est déposée par EJM. Tant que son épaisseur reste inférieure à une épaisseur critique égale à 1,7 monocouches, la maille d'InAs s'adapte à celle du GaAs et des contraintes s'accumulent. La croissance est dite bidimensionnelle car elle consiste en l'empilement de plans atomiques.

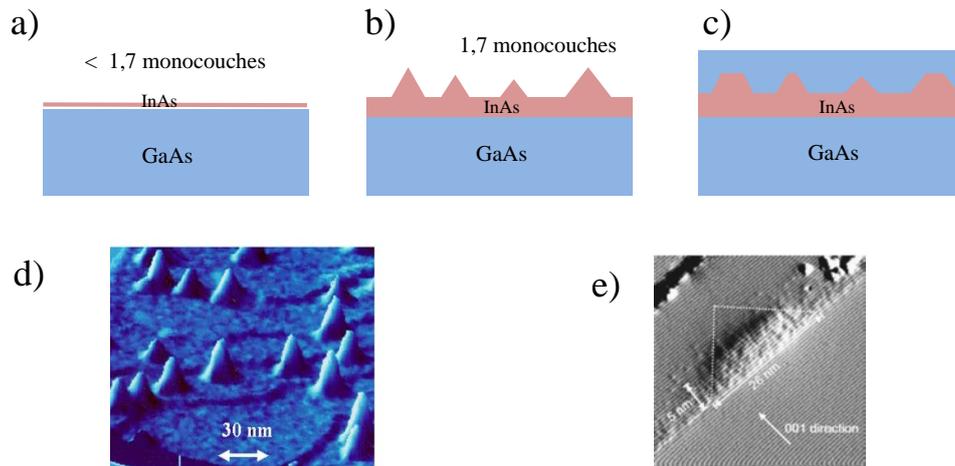


FIGURE 1.7 – a), b) et c) Différentes étapes d'une croissance de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs. d) Image AFM d'îlots d'InAs sur un substrat de GaAs avant l'étape d'encapsulation, réalisé au Laboratoire de Photonique et Nanostructures par J.M. Moison. e) Image STM d'une coupe de boîte quantique après encapsulation, d'après Koenraad [59]. Les pointillés représentent les contours du cône "non tronqué".

2. Lorsque l'épaisseur atteint en moyenne 1,7 monocouches, les contraintes se relâchent et des îlots nanométriques se forment, répartis aléatoirement sur la première monocouche d'InAs avec une densité de  $10^9 - 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ . Les îlots sont de forme conique (figure 1.7 (b)), de rayon de base  $\approx 20 \text{ nm}$  et de hauteur  $\approx 5 \text{ nm}$  en moyenne (figure 1.7 (d)). La monocouche restante forme un puits quantique, communément appelée couche de mouillage, de l'anglais "wetting layer".
3. Une couche de GaAs est enfin déposée sur le plan de boîtes. Le GaAs encapsule les îlots d'InAs qui prennent la forme de cônes tronqués (figures 1.7 (c) et (e)). Les dimensions nanométriques et la différence de gap entre InAs et GaAs permettent le confinement des porteurs de charges, électrons et trous, dans les trois directions de l'espace.

## 1.3 Excitations électroniques dans les boîtes quantiques

### 1.3.1 Notion d'exciton dans les boîtes quantiques

L'excitation d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction crée une paire électron-trou. Cette paire peut être liée par interaction coulombienne et

forme une quasi-particule appelée exciton. Cette quasi-particule est constituée d'une particule de charge négative et d'une particule de charge positive, ce qui a permis de montrer que son spectre d'énergie est similaire à celui d'un atome d'hydrogène [60]. Par analogie, on peut définir un rayon de Bohr de l'exciton dont la dimension typique est de l'ordre de la dizaine de nm, et une énergie de liaison de l'ordre de quelques meV.

Le confinement renforce le recouvrement des fonctions d'onde des porteurs et donc l'interaction entre le trou et l'électron, conduisant à un renforcement des effets excitoniques dans les systèmes de basse dimension. Cependant dans les boîtes quantiques, en toute rigueur, le potentiel de confinement domine largement l'interaction coulombienne qui n'apporte alors qu'une correction faible à l'énergie du système [61]. La liaison de la paire électron-trou est donc dominée par le confinement et, en toute rigueur, nous ne devrions pas utiliser le terme "exciton" pour désigner une paire électron-trou dans une boîte quantique, même si nous le ferons, par simplicité.

### 1.3.2 États multi-chargés d'une boîte quantique

Nous n'avons pour l'instant considéré que le cas où une paire électron-trou est injectée dans la boîte. Cependant, dans le cas où plusieurs paires sont créées dans la boîte quantique, cela donne naissance à des états à plusieurs particules déjà observés [62, 63, 64] et que nous allons brièvement décrire (voir figure 1.8) :

#### L'exciton neutre

Lorsqu'une unique paire électron-trou est injectée dans une boîte quantique on parle d'exciton neutre (noté  $X$ ). Comme nous l'avons vu précédemment, le trou et l'électron peuvent chacun avoir deux spins différents. En ne considérant que des états de trou lourd (de plus haute énergie), quatre états de paires peuvent alors se former. Dans la base  $|J_z^e, J_z^h\rangle = |J_{tot}\rangle$  où  $J_z$  est la projection du moment cinétique (ou spin) de la particule sur l'axe  $z$  et  $J_{tot}$  le spin associé à la paire électron-trou, les états s'écrivent :

$$\begin{aligned} |\uparrow, \uparrow\rangle &= \left| \frac{1}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle = | + 2 \rangle & |\uparrow, \downarrow\rangle &= \left| \frac{1}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle = | - 1 \rangle \\ |\downarrow, \uparrow\rangle &= \left| -\frac{1}{2}, \frac{3}{2} \right\rangle = | + 1 \rangle & |\downarrow, \downarrow\rangle &= \left| -\frac{1}{2}, -\frac{3}{2} \right\rangle = | - 2 \rangle \end{aligned} \quad (1.13)$$

Les photons ayant un spin  $+1$  ou  $-1$ , ils ne peuvent donc se coupler qu'aux paires ayant le même moment cinétique. Seules deux paires sont optiquement actives : celles de moment  $|J = \pm 1\rangle$ , appelées "excitons brillants". Les deux autres paires, de moment  $|J = \pm 2\rangle$  sont dites "noires", car elles ne peuvent pas se coupler à la lumière.

#### L'exciton chargé

Lorsque la boîte contient une charge excédentaire, il se forme un trion (complexe formé par trois charges) ou exciton chargé. Deux possibilités existent alors, l'exciton

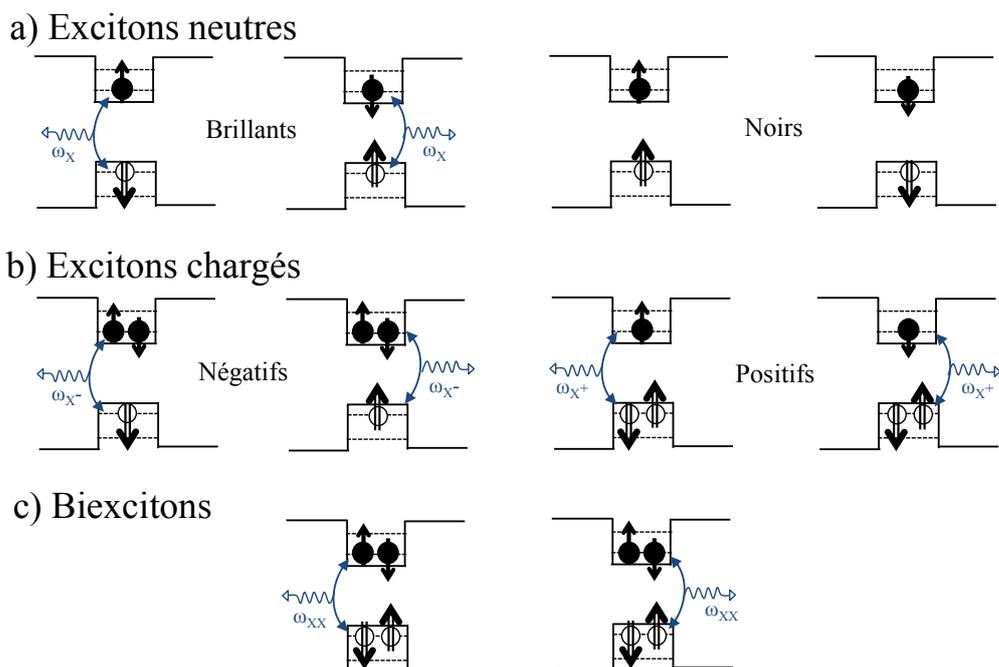


FIGURE 1.8 – Schéma des différents excitons dans une boîte quantique. a) Excitons neutres brillants (gauche) et noirs (droite). b) Excitons chargés négativement (gauche) et positivement (droite). c) Biexcitons

chargé positivement  $X^+$  (i.e deux trous et un électron) et l'exciton chargé négativement  $X^-$  (i.e deux électrons et un trou). Dans ce système, la transition optique se fait alors entre les états  $|\uparrow\downarrow(\uparrow \text{ ou } \downarrow)\rangle \rightarrow |(\uparrow \text{ ou } \downarrow)\rangle$  et  $|(\uparrow \text{ ou } \downarrow)\uparrow\downarrow\rangle \rightarrow |(\uparrow \text{ ou } \downarrow)\rangle$ , laissant toujours la boîte dans un état chargé. Le principe d'exclusion de Pauli impose que les particules de même nature dans la boîte aient un spin opposé. La transition optique est alors toujours autorisée, entre un électron et un trou de spin opposés et ces complexes n'ont pas d'équivalent aux excitons noirs.

### Le biexciton

Une boîte peut a priori contenir deux paires électron-trou qui peuvent donner naissance à un état lié de type moléculaire, appelé biexciton, et le spin de cet état est alors  $|J = 0\rangle$ . Cet état peut émettre un photon lors de la recombinaison d'une des paires électron-trou brillante. La présence de la deuxième paire modifie l'énergie de la transition optique et la transition entre les états  $|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle \rightarrow |\uparrow\downarrow \text{ ou } \downarrow\uparrow\rangle$  est identifiée comme l'émission du biexciton. La paire restant alors dans la boîte est alors un exciton neutre brillant.

Notons tout de même que d'autres complexes plus exotiques existent mais leur structure électronique et la probabilité qu'ils se forment les rendent plus difficiles à observer expérimentalement. Parmi eux, nous pouvons trouver le biexciton chargé  $XX^+$  ou  $XX^-$ , l'exciton doublement chargé  $X^{2+}$  ou  $X^{2-}$ , etc... [64, 65]

### 1.3.3 Énergie de liaison - Corrélations coulombiennes

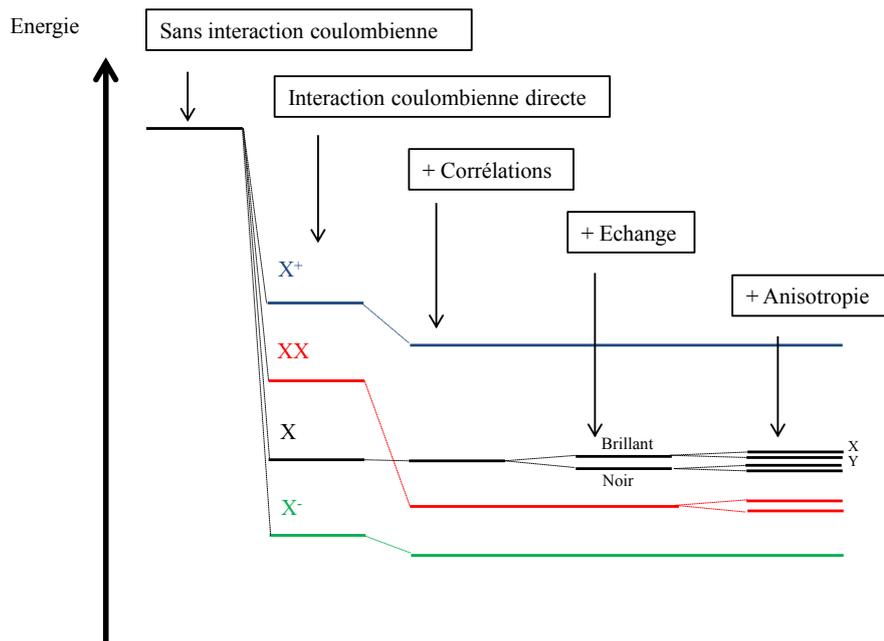


FIGURE 1.9 – Énergie des transitions excitoniques en fonction des différents termes d'interaction.

Dans le cas où le hamiltonien ne prend en compte que le potentiel de confinement, l'énergie de transition des différents complexes excitoniques est la même. Les particules confinées sont chargées et les interactions coulombiennes modifient l'énergie du système. L'effet de ces interactions a été calculé théoriquement par Schliwa *et al.* [61], et les contributions principales identifiées (voir figure 1.9) sont les suivantes :

1. **L'interaction coulombienne directe** : Elle correspond à l'interaction entre deux particules chargées. Cette interaction induit un changement de l'énergie de liaison des complexes excitoniques et se note  $J^{ij}$ ,  $\{i, j\} = \{e, h\}$ . Chacune des trois combinaisons est de l'ordre de 20 meV et dépend fortement de la taille de la fonction d'onde et du type de particule considérée. Cette énergie est liante pour

$J^{eh}$ , et anti-liante pour  $J^{ee}$  et  $J^{hh}$ . Cette interaction est donc responsable de la levée de dégénérescence des états  $X$ ,  $XX$ ,  $X^+$  et  $X^-$ .

2. **Termes de corrélations** : Les électrons et les trous sont des fermions indiscernables. Le principe d'exclusion de Pauli implique que deux électrons ou deux trous ne peuvent avoir le même spin. La fonction d'onde à plusieurs particules doit donc être anti-symétrique. En réécrivant les fonctions d'onde de  $XX$ ,  $X^+$  et  $X^-$  comme une combinaison linéaire de déterminants de Slater, une renormalisation de l'énergie  $\delta_{corr}$  apparaît, de l'ordre de quelques meV. Cette énergie de corrélation permet d'expliquer pourquoi le biexciton peut devenir liant.
3. **Interaction d'échange** : La structure fine de l'exciton neutre  $X$ , résulte de la levée de dégénérescence des quatre états excitoniques de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{eV}$ . Elle provient de deux termes essentiels :
  - a) L'interaction coulombienne interbande, souvent appelée interaction d'échange isotrope électron-trou, vient du couplage entre les excitons brillants et des photons virtuels qui proviennent de l'interaction de Coulomb entre un électron de la bande de conduction et tous les autres électrons qui remplissent la bande de valence ( $N-1$ ). Ce processus peut s'apparenter à l'échange d'une paire électron-trou par une autre, par émission et absorption de photons virtuels. L'interaction coulombienne qui résulte de cet échange est répulsive et lève la dégénérescence des excitons brillants et noirs en augmentant l'énergie des excitons brillants.
  - b) L'anisotropie d'une boîte, en terme de forme ou de composition, modifie la symétrie des fonctions d'onde des porteurs de charges [66]. Les états propres de la boîte sont des superpositions des états  $J = \pm 1$  et ne sont plus dégénérés :

$$\begin{aligned} |X\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|+1\rangle + |-1\rangle) \\ |Y\rangle &= \frac{1}{i\sqrt{2}} (|+1\rangle - |-1\rangle) \end{aligned} \tag{1.14}$$

L'écart en énergie entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  est appelé splitting d'échange, noté  $\delta_{FFS}$ . L'anisotropie de forme induit également une anisotropie des contraintes dans le matériau. Ces contraintes sont responsables de la création d'un champ piezo-électrique. Ce champ modifie lui aussi l'énergie des deux états excitoniques. [67]

Les états  $|\pm 1\rangle$  sont couplés à des photons polarisés circulairement  $\sigma^\pm$ . Au contraire, la levée de dégénérescence des excitons brillants couple les excitons à des photons polarisés linéairement, vertical ou horizontal. Les excitons chargés ne sont pas

affectés par l'interaction d'échange, et se couplent à des états de la lumière polarisés circulairement. Les règles de sélection optique pour le biexciton et l'exciton neutre d'une boîte anisotrope sont schématisées figure 1.10. Lorsqu'un biexciton se trouve dans la boîte, il émet un photon polarisé linéairement, laissant ainsi un exciton dans la boîte. Cet exciton peut à son tour émettre un photon, à une énergie différente, qui aura la même polarisation que le premier photon émis.

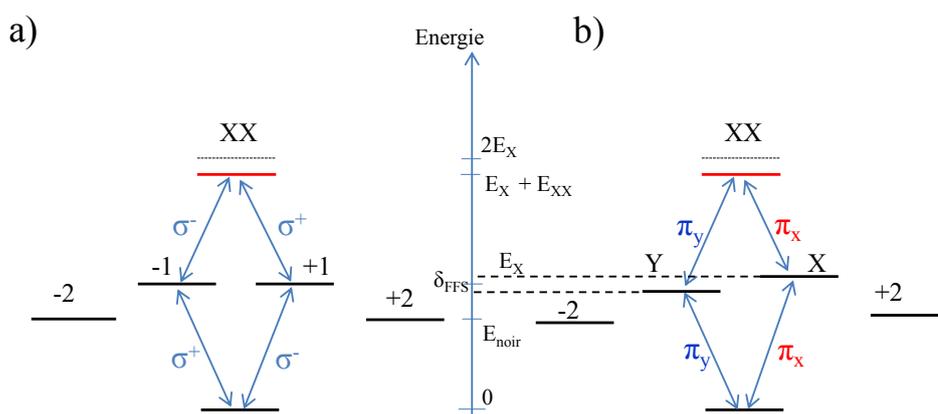


FIGURE 1.10 – Polarisation des photons émis lors de la cascade radiative du biexciton pour un splitting d'échange nul (a) ou non nul (b).  $E_X$  est l'énergie de la transition optique de l'exciton et  $E_{XX}$  est l'énergie de la transition biexciton-exciton.

### 1.3.4 Mélange trou lourd-trou léger

La levée de dégénérescence des bandes de trous nous a permis en première approximation de ne considérer que les trous lourds dans la formation des complexes excitoniques. Cependant, les contraintes dans les boîtes quantiques ainsi que l'anisotropie de forme modifient les propriétés de symétrie du cristal. La structure de bande au voisinage de  $\vec{k} = 0$ , en tenant compte de l'anisotropie, a été calculée par Luttinger et Kohn [68], puis Bir et Pikus [69]. Ils trouvent alors que les états ne sont plus composés purement de trous lourds, mais d'un mélange de trous lourds et de trous légers. Ce problème a été largement étudié dans l'équipe au cours de la thèse de C. Tonin [21, 70]. Nous ne reprenons ici que quelques résultats essentiels. Ce mélange modifie notamment les propriétés de polarisation des différents excitons [71, 70] car la fonction d'onde du trou résulte d'un mélange des fonctions d'onde du trou lourd  $\phi_{\pm 3/2}$  et du trou léger  $\phi_{\pm 1/2}$  :

$$\phi_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{1 + |\beta|^2}} (\phi_{\pm 3/2} + e^{\mp 2i\Psi} \beta \phi_{\mp 1/2}) \quad (1.15)$$

où  $\beta$  est le coefficient de mélange, qui dépend de la proportion de trous légers, mais également du recouvrement des fonctions enveloppes des trous lourds et des trous légers.  $\Psi$  est appelé l'angle d'anisotropie du système.

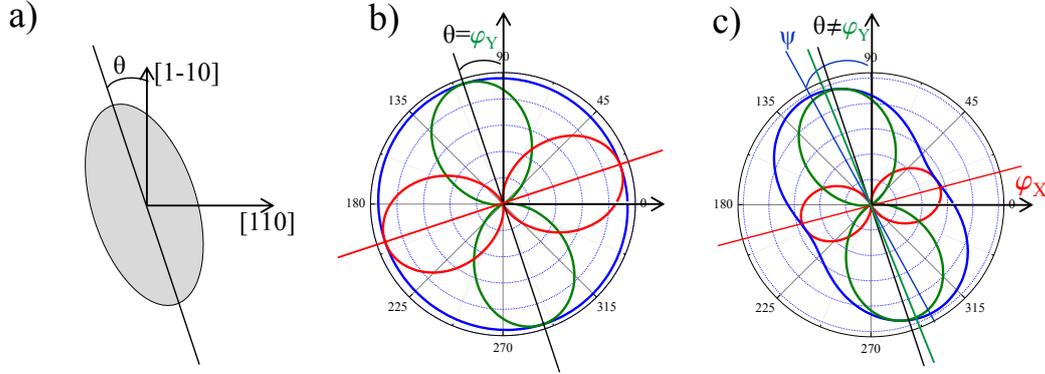


FIGURE 1.11 – Diagrammes polaires de l'émission d'un exciton neutre pour une excitation non-résonante. a) Schématisation d'une boîte asymétrique, et orienté d'un angle  $\theta$  par rapport aux axes cristallographique. b) Diagramme polaire sans mélange trous lourds-trous légers,  $\Psi = \theta$ . c) Diagramme polaire avec un paramètre de mélange  $\beta = 0.25$  et  $\Psi \neq \theta$ . En rouge, est représenté l'intensité de luminescence  $I_X$ , et en vert l'intensité  $I_Y$ . En bleu est représenté la somme des deux intensités. Les angles de polarisation du maximum d'intensité sont notés  $\phi_X$  et  $\phi_Y$ .

La modification du diagramme polaire d'émission de la boîte quantique qui en résulte (c'est-à-dire l'intensité de la microphotoluminescence en fonction de l'angle d'analyse d'un polariseur) fait que, pour un exciton neutre, les axes de polarisation des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont modifiés, et ne sont plus orthogonaux. La figure 1.11 montre le cas général d'une boîte orientée d'un angle  $\theta$  par rapport aux axes cristallographiques. Lorsqu'il n'y a pas de mélange, les axes de polarisation sont orientés suivant  $\theta$  et  $\theta + \pi/2$ . Ils sont alors orthogonaux. Lorsque le mélange est pris en compte, les axes de polarisation ne sont plus suivant l'orientation de la boîte et ne sont plus orthogonaux. Ainsi le diagramme polaire d'émission des deux états propres s'écrit en fonction de l'angle d'analyse  $\alpha$  :

$$\begin{aligned} I_X(\alpha) &= \left[ \sqrt{1 - \beta^2} \cos(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \cos(\alpha + 2\Psi + \theta) \right] \\ I_Y(\alpha) &= \left[ \sqrt{1 - \beta^2} \sin(\alpha + \theta) - \frac{\beta}{\sqrt{3}} \sin(\alpha + 2\Psi + \theta) \right] \end{aligned} \quad (1.16)$$

Lorsque l'écart en énergie entre les deux raies d'émission n'est pas résolue par le dispositif de détection, l'intensité mesurée est donnée par :

$$I_{tot}(\alpha) = I_X(\alpha) + I_Y(\alpha) \quad (1.17)$$

dont la représentation est donnée par les courbes en bleu dans la figure 1.11.

Ainsi nous verrons aux chapitre 2 et 3 que l'étude de la micro-photoluminescence en polarisation nous renseigne sur la nature des états excitoniques :

- Pour un exciton neutre, la structure fine induit que la luminescence des deux états propres de la boîtes sera polarisée linéairement comme nous l'avons décrit ici.
- Pour un exciton chargé, la luminescence est émise avec une polarisation elliptique, dont l'ellipticité dépend du paramètre de mélange.

## 1.4 Émission de photons uniques et indiscernables par une boîte quantique

### 1.4.1 Transition optique dans une boîte

La boîte quantique peut être considérée comme un système à deux niveaux où l'état fondamental est la boîte vide, et l'état excité est la boîte contenant une paire électron-trou. En négligeant les états noirs qui ne sont pas couplés à la lumière, lorsque ce système est excité et qu'un exciton se trouve dans la boîte, l'exciton peut se recombiner en émettant un photon. On notera l'état excité initial de la boîte  $|\Psi_i\rangle$ , d'énergie  $E_i = \hbar\omega_i$ , et l'état fondamental final  $|\Psi_f\rangle$ , d'énergie  $E_f = \hbar\omega_f$ . Il est possible de décrire l'émission spontanée d'un photon d'énergie  $\hbar\omega$ , comme le passage de l'état  $|\Psi_i, 0\rangle$  (état excité de la boîte et zéro photon) à l'état  $|\Psi_f, 1\rangle$  (état fondamental de la boîte et 1 photon). L'hamiltonien d'interaction dipolaire électrique entre la lumière et la matière s'écrit :

$$H = -\hat{\mu}\hat{E}(\vec{r}) \quad (1.18)$$

où  $\hat{\mu}$  est l'opérateur moment dipolaire électrique et  $\hat{E}$  est l'amplitude du champ électrique au niveau de la boîte, situé en  $\vec{r}$ . Le taux d'émission spontanée est alors donné par la règle d'or de Fermi :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle \Psi_f, 1 | H | \Psi_i, 0 \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (1.19)$$

$\Gamma$  est l'inverse du temps de vie radiatif  $T_1$  et peut être relié aux grandeurs caractéristiques de la boîte par l'intermédiaire de la force d'oscillateur  $f$  :

$$f = \frac{2}{m_e \hbar \omega_0} |\langle \Psi_f, 1 | H | \Psi_i, 0 \rangle|^2, \text{ et } \Gamma = \frac{2\pi}{n} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{\omega_0^2}{m_e c^3} f \quad (1.20)$$

avec  $e$  la charge de l'électron,  $m_e$  la masse de l'électron libre,  $n$  l'indice de réfraction du matériau,  $c$  la vitesse de la lumière, et  $\hbar\omega_0 = \hbar\omega_f - \hbar\omega_i$  l'énergie de la transition optique.

De plus, la force d'oscillateur peut être reliée au moment dipolaire  $\mu$  de la boîte quantique :

$$f = \frac{2m_e\omega_0}{q^2\hbar}\mu^2 \quad (1.21)$$

Une boîte quantique possède une force d'oscillateur typique de l'ordre de 10 [72]. En comparaison, les transitions des atomes légers possèdent des forces d'oscillateur de l'ordre de 1 [73]. Ainsi les boîtes quantiques se différencient des atomes de deux manières :

- Elles possèdent un temps de vie plus court que les atomes, soit environ 1 ns contre 1  $\mu$ s à 1 ms dans le cas des atomes.
- L'absorption, qui est également reliée à la force d'oscillateur, est bien plus forte pour une boîte quantique.

### 1.4.2 Relaxation de la cohérence

Les boîtes quantiques ne sont pas des systèmes à deux niveaux isolés. En ce sens, les interactions d'une boîte et de son environnement entraînent une perte de cohérence par rapport à la limite radiative. Deux processus principaux sont responsables de la perte de cohérence, le couplage aux phonons de la matrice de GaAs environnante, et les fluctuations des charges environnantes piégées par des défauts dans la structure :

- a) Un exciton dans une boîte quantique se couple aux phonons longitudinaux optiques (LO) et acoustiques (LA) du cristal de GaAs. Le couplage aux phonons LO est responsable de la relaxation non-radiative très efficace qui intervient lors d'une excitation non résonante. Il a été mis en évidence que l'exciton se couple fortement au continuum de phonons optiques [74, 75] et forme alors des états habillés exciton-phonons ou polarons [76]. La partie phonon des polarons est instable et peut se désintégrer en un phonon LO et un phonon LA, la partie excitonique perdant alors l'énergie correspondant au phonon LA. L'exciton à haute énergie relaxe alors par ce couplage aux phonons. L'interaction polaronique est également responsable d'une perte de cohérence et d'un élargissement de la raie de luminescence à haute température [77].

Les excitons se couplent également directement aux phonons acoustiques LA de la matrice environnante de GaAs. Lors de la recombinaison radiative de l'exciton, celui-ci peut absorber ou émettre un phonon LA modifiant alors l'énergie d'émission de la luminescence. Ce couplage est responsable de l'apparition des ailes de phonons dans les spectres de luminescence [78]. De plus, lors d'une excitation résonante, les phonons LA se couplent de manière résonante avec les états polaroniques (état habillés exciton + photons), engendrant une perte de cohérence

supplémentaire. Ce couplage sera plus détaillé et mis en évidence expérimentalement dans le chapitre 3.

b) Les défauts de la structure de la couche de mouillage peuvent capturer des charges à proximité des boîtes. Ces charges sont alors faiblement confinées, et le piégeage et le dépiégeage de ces charges entraînent une fluctuation de l'environnement électrostatique. En effet, la présence d'une charge à proximité de la boîte entraîne un décalage de l'énergie d'émission par effet Stark. Ce phénomène dit de diffusion spectral a été observé par de nombreux groupes [79, 80, 81, 82]. Deux régimes de fluctuation ont été mis en évidence :

- i Régime de fluctuation lente : ce régime correspond à une forte puissance d'excitation non résonante (au-delà de la saturation de la boîte). La raie d'émission a un profil gaussien, dont la largeur augmente avec la puissance d'excitation.
- ii Régime de fluctuation rapide : A faible puissance d'excitation non résonante, ou pour une excitation résonante, ce régime induit un élargissement de quelques  $\mu\text{eV}$  de la raie, qui garde un profil lorentzien. Dans ce régime la description des déphasages par un temps  $T_2^*$  est donc adaptée, puisqu'elle conduit à une perte exponentielle de la cohérence en fonction du temps.

Nous serons amenés à modéliser les processus de déphasage purs au chapitre 4, afin d'évaluer l'indiscernabilité de notre source. Pour une excitation résonante, les interactions avec les phonons et le champ électrostatique fluctuant peuvent être modélisées par un bruit blanc, entraînant une perte de la cohérence en exponentielle décroissante avec un temps caractéristique  $T_2^*$ .

### 1.4.3 Stratégies pour émettre des photons indiscernables

L'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique est reliée au rapport  $T_2/2T_1$ . Dans une boîte quantique, le couplage avec l'environnement rend ce rapport inférieur à 1. Afin d'avoir une source de photons uniques ayant le meilleur degré d'indiscernabilité possible, il est nécessaire d'augmenter ce rapport. Pour cela, deux stratégies sont possibles :

- Il est possible de diminuer le temps de vie  $T_1$  en réalisant une structure en cavité modifiant la densité spectrale des modes optiques couplés à l'exciton. Ainsi, en insérant les boîtes dans des cavités, on modifie leurs propriétés d'émission, et notamment le taux d'émission spontanée. Cet effet a été prédit en 1946 par E.M. Purcell [83]. La modification du taux d'émission spontanée en présence d'une cavité est depuis appelé effet Purcell, et est définie par la grandeur :

$$F_P = \frac{\Gamma_{cav}}{\Gamma_{vide}} \quad (1.22)$$

où  $\Gamma_{cav}$  est le taux d'émission spontanée dans la cavité et  $\Gamma_{vide}$  le taux d'émission spontanée dans le vide. Ce facteur peut être relié au volume du mode électromagnétique  $V$  et au facteur de qualité  $Q$  par l'expression :

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3 \frac{Q}{V} \quad (1.23)$$

où  $\lambda/n$  est la longueur d'onde dans le matériau. Ces structures permettent à l'heure actuelle de multiplier le taux d'émission spontanée d'une boîte quantique par un facteur  $10^2 - 10^3$  [84]. En obtenant des temps de vie plus courts que les temps de déphasages purs, on obtient alors une source de photons indiscernables [85, 86, 87]. Une autre conséquence de cette structure est l'émission des photons à une fréquence plus élevée, augmentant la fréquence à laquelle il est possible de transmettre une information quantique.

- La seconde approche consiste à diminuer le taux de déphasage pur  $1/T_2^*$ , afin de le rendre négligeable comparé au taux d'émission spontanée. Pour cela, il est d'abord nécessaire de travailler à des températures cryogéniques (quelques Kelvins). A ces températures, les vibrations du cristal et leur interaction avec la boîte sont fortement diminuées.

Afin de supprimer les processus de déphasage liés à la relaxation non radiative des porteurs qui ont lieu lors d'une excitation à haute énergie, il est possible d'exciter la boîte quantique directement à l'énergie de la transition optique de l'exciton. Le temps de déphasage pur devient beaucoup plus long que le temps de vie radiatif, et il est alors possible d'émettre des photons indiscernables [88, 89]. Les paires électron-trou sont excitées de manière cohérente avec le laser et le système à deux niveaux peut alors servir de bit quantique sur lequel il est possible d'effectuer des opérations par des expériences de contrôle cohérent ou de mélange à quatre ondes [90, 16, 22].

Expérimentalement, ces deux aspects sont toujours plus ou moins combinés. Ainsi, les boîtes d'InAs sont presque toujours étudiées à des températures cryogéniques.

## 1.5 Conclusion

Nous venons de voir dans ce chapitre introductif que les boîtes quantiques possèdent un spectre d'énergie discret et qu'elles peuvent constituer a priori des émetteurs de photons uniques. Nous pourrions ainsi définir un système à deux niveaux que nous pourrions par la suite utiliser comme bit quantique. A l'aide d'impulsions lumineuses très courtes (de l'ordre de la picoseconde) il est possible de créer, contrôler et manipuler ces qubits. Une des originalités de notre travail réside dans l'étude des boîtes sous excitation résonnante. Pour cela, nous avons mis en place une configuration expérimentale originale basée sur une géométrie d'optique guidée. Nous verrons comment l'excitation

résonnante permet de préserver la cohérence du système et améliorer les propriétés d'indiscernabilité des photons émis, ce qui était un des objectifs de ce travail.

Les études antérieures dans l'équipe [20, 21] ont montré qu'il est possible d'inscrire et de contrôler un qubit dans une boîte quantique par des expériences de contrôle cohérent. Cette thèse s'inscrit dans la continuité de ces travaux et nous cherchons maintenant à utiliser ce qubit pour émettre des photons uniques. L'excitation résonnante permet de préserver la cohérence des boîtes, et les photons uniques doivent donc être indiscernables. Nous avons également inséré les boîtes dans une microcavité à miroirs de Bragg afin d'augmenter l'efficacité de collection des photons de luminescence. L'objectif est de créer des états quantiques plus complexes, et intriquer deux photons provenant d'une ou de deux boîtes.



# Chapitre 2

## Caractérisation de boîtes quantiques uniques d'InAs/GaAs

Dans cette partie, nous détaillerons le dispositif expérimental nous permettant de réaliser les expériences sous excitation résonnante, que ce soit des expériences de micro-photoluminescence ( $\mu$ -PL), de  $\mu$ -PL résolue en temps, de corrélations de photons pour les mesures de la statistique des photons émis, ou des expériences d'interférences à deux photons pour l'étude de l'indiscernabilité des photons. Mon travail de thèse a consisté pour grande partie à la réalisation des deux expériences de corrélations de photons qui n'avaient pas encore été mises en place par l'équipe. L'interféromètre de Mach-Zehnder utilisé pour les expériences d'interférences à deux photons, a d'abord été monté en espace libre, puis j'ai dû le dupliquer sous forme fibrée de façon à assurer un recouvrement parfait des modes spatiaux des deux faisceaux. Cela a nécessité en tout plusieurs mois de réglages avant d'obtenir les premières courbes d'indiscernabilité. Après une brève présentation des propriétés structurales des boîtes elles-mêmes puis des échantillons complets, nous passerons en revue une par une chaque partie du dispositif expérimental qui nous a permis d'obtenir les résultats présentés dans cette thèse.

### 2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est présenté dans sa globalité sur la figure 2.1. Après une brève présentation des échantillons étudiés, nous verrons comment il est possible d'isoler une boîte unique, spatialement et spectralement, afin d'en étudier les caractéristiques. Puis nous verrons qu'il est possible d'étudier les processus radiatifs au moyen d'expériences résolues en temps, et les processus de cohérence grâce à la spectroscopie par transformée de Fourier (FTIR). Enfin nous détaillerons les expériences de corrélation de photons permettant d'accéder à la statistique des photons émis.

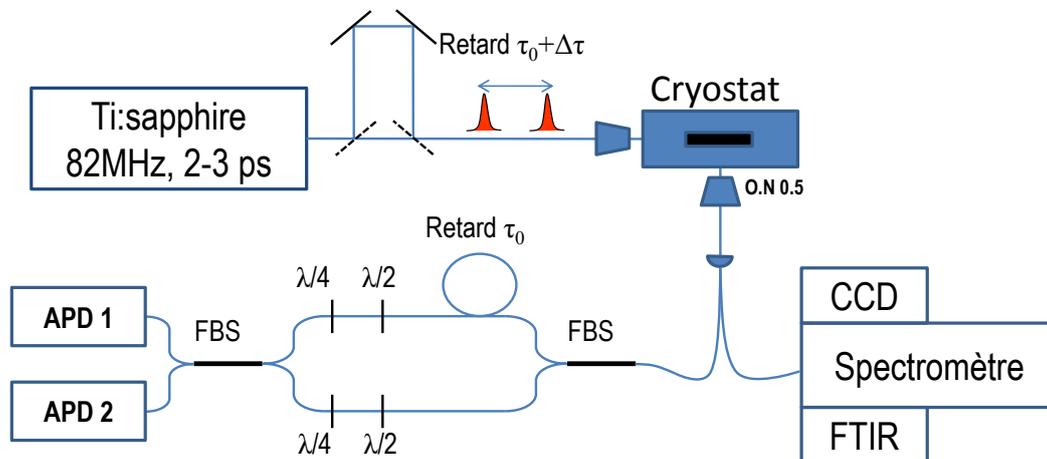


FIGURE 2.1 – Schéma du montage expérimental. L'échantillon d'étude est placé dans un cryostat à 7 K. L'échantillon est excité au moyen d'un laser Ti :Saphir délivrant des impulsions picosecondes (2-3 ps) à 82 MHz. Le signal est collecté perpendiculairement à l'excitation par un objectif de microscope d'ouverture numérique 0.5, et est couplé dans une fibre optique permettant de diriger la lumière dans deux dispositifs. Un spectromètre est couplé à une CCD et un interféromètre de Mach-Zehnder pour réaliser de la spectroscopie à transformée de Fourier (FTIR). Un Mach-Zehnder entièrement fibré permet d'étudier la statistique des photons émis. La lumière est scindée en deux, puis recombinaisonnée, par des lames 50/50 fibrées (FBS). Des contrôleurs de polarisation quart-d'onde et demi-onde permettent de compenser la biréfringence dans la fibre optique. Les photons sont détectés par des photodiodes à avalanche (APD).

### 2.1.1 Caractéristiques de l'échantillon

Notre but est d'exciter les boîtes quantiques à la résonance de la transition optique liée à la recombinaison radiative d'un exciton, afin d'augmenter les propriétés de cohérence des photons de luminescence. Cela pose un défi technique puisque le laser est, par définition, à la même énergie que la luminescence observée. Le laser diffusé par l'échantillon est alors détecté par les appareils de mesure qui sont ainsi éblouis. En géométrie de micro-photoluminescence usuelle où un même objectif de microscope sert à l'excitation et à la détection du signal, et aux puissances typiques de saturation

d'une boîte quantique, on détecte plusieurs centaines de photons provenant du laser diffusé pour chaque impulsion, alors que les boîtes n'émettent qu'un photon par impulsion. Nous avons résolu ce problème en utilisant une géométrie guidée pour découpler spatialement le laser d'excitation et le signal détecté. Nous réduisons ainsi d'un facteur supérieur à  $10^9$  la quantité de photons de l'excitation détectés, et nous pouvons étudier les boîtes sous excitation résonante. Deux types d'échantillons ont principalement été étudiés au cours de cette thèse. Le premier, que nous appellerons échantillon S1 a d'abord été étudié pendant la thèse de Catherine Tonin. S2 et S3 sont deux échantillons de deuxième génération, réalisés pour mener à bien les travaux de cette thèse. La croissance des échantillons a été réalisée par Aristide Lemaître au Laboratoire de Photonique et Nanostructure (LPN) à Marcoussis. Les gravures ont été réalisées par Anthony Martinez au LPN également. Nous allons détailler les caractéristiques principales de ces échantillons.

### Plan de boîtes quantiques

Les échantillons possèdent une densité de boîtes permettant l'étude de boîtes uniques. Pour l'échantillon S1 elle est comprise entre  $10^9$  et  $10^{10}$  boîtes/cm<sup>2</sup> soit entre 10 et 100 boîtes/ $\mu\text{m}^2$  qu'il est alors possible de séparer spectralement. Les échantillons S2 et S3 possèdent  $10^8$  à  $10^9$  boîtes/cm<sup>2</sup>, soit moins de dix boîtes en moyenne dans le champ d'observation de l'objectif de microscope. La distribution en énergie des boîtes est comprise entre 1,31 eV (950 nm) et 1,36 eV (910 nm). Nous observons la luminescence de la couche de mouillage à 1,43 eV (870 nm).

Alors que la densité moyenne sur l'échantillon S2 est faible, la répartition des boîtes est très inhomogène, avec des densités proches de zéro sur une grande partie de l'échantillon, et des zones possédant plusieurs boîtes par  $\mu\text{m}^2$ . Comme nous le verrons par la suite, ces échantillons possèdent une cavité qui limite la plage de longueur d'onde sur laquelle nous pouvons observer la luminescence des boîtes. Il est donc difficile d'évaluer expérimentalement la densité réelle de boîtes sur l'échantillon.

### Échantillon S1 : Gravure de rubans pour l'excitation guidée

Afin de réaliser un guide d'onde unidimensionnel dans nos échantillons, il est nécessaire de créer un confinement de la lumière dans deux directions. Dans cet échantillon, l'hétérostructure d'InAs/GaAs est réalisée en faisant croître une couche d'InAs entre deux couches de GaAs d'égale épaisseur. Cet ensemble de  $0,6 \mu\text{m}$  d'épaisseur est inséré entre deux couches de GaAl<sub>0,6</sub>As de  $1 \mu\text{m}$  d'épaisseur. La différence d'indice entre le GaAl<sub>0,6</sub>As (3,23 à température ambiante à 885 nm) et le GaAs (3.61 à température ambiante à 885 nm) permet de confiner la lumière suivant l'axe de croissance [001] (voir figure 2.2 (a)), réalisant un guide d'onde bidimensionnel. Le confinement dans l'axe  $[1\bar{1}0]$  est réalisé en gravant périodiquement des rubans sur l'échantillon. La technique utilisée est une gravure chimique réalisée après la croissance de l'échantillon : un masque formant des séries de quatre rubans de largeur comprises entre  $0,5 \mu\text{m}$  et

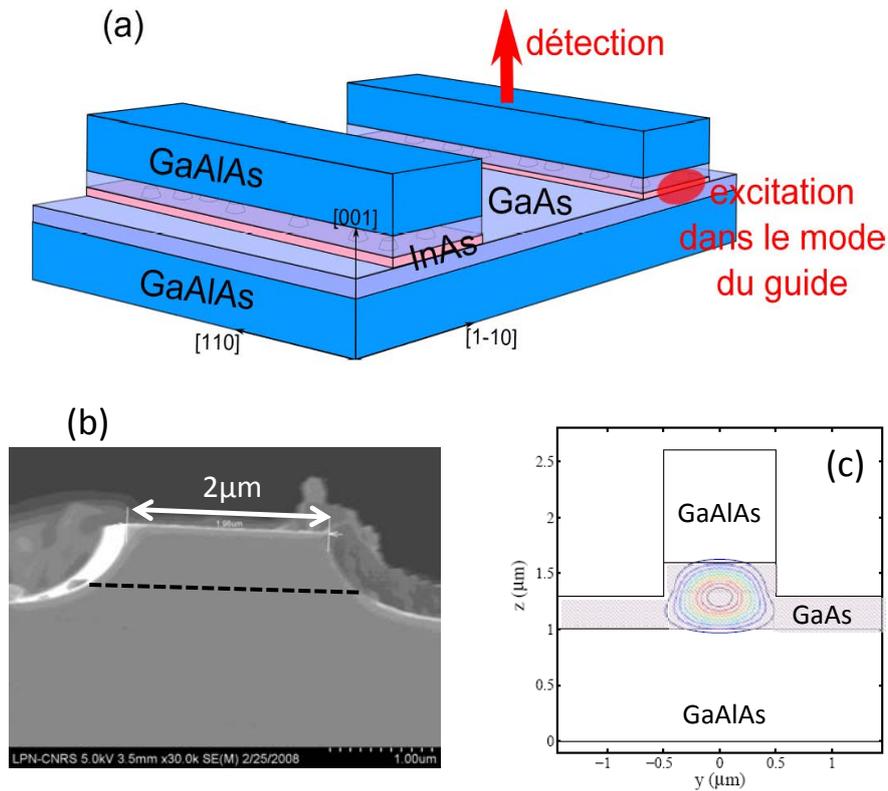


FIGURE 2.2 – Échantillon S1 : a) Schéma de la structure du guide d'onde b) Image TEM d'une coupe transversale d'un guide d'onde. Les pointillés représentent le plan de boîtes. c) profil d'intensité du mode fondamental du guide d'onde.

$2 \mu\text{m}$  et séparés de  $50 \mu\text{m}$  est appliqué sur l'échantillon. Lors du processus de gravure, les parties situées sous ce masque sont laissées intactes. Avec ce procédé, les flancs des rubans ne sont pas rectilignes mais ont un profil courbe (voir figure 2.2 (b)). Cependant, en gravant des rubans sur  $1,3 \mu\text{m}$  de profondeur, soit juste en dessous du plan de boîtes quantiques, on montre l'existence d'un mode guidé, confiné par la structure (figure 2.2 (c)). Les rubans forment alors des guides d'ondes unidimensionnels le long desquels le laser se propage sans dispersion.

### Échantillons S2 et S3 : cavité à miroirs de Bragg

Pour ce second type d'échantillon, nous avons souhaité augmenter l'efficacité de collection de la luminescence des boîtes en ajoutant une cavité à miroirs de Bragg. La cavité a été conçue avec plusieurs contraintes :

- Nous souhaitons concentrer l'émission de la luminescence dans la direction de détection. La cavité doit donc permettre de modifier la densité de modes des photons couplés aux boîtes tel que leur diagramme d'émission devienne direc-

tionnel. On diminue alors le nombre de photons émis dans une direction autre que celle de l'objectif de détection.

- La cavité doit permettre une extraction maximum du signal, c'est-à-dire qu'elle doit notamment être dissymétrique afin d'augmenter l'efficacité d'extraction du signal du côté où se trouve l'objectif de détection. Dans le cas d'une cavité équilibrée, i.e., avec le même nombre de miroirs de chaque côté, l'efficacité de l'extraction serait alors de 50% au maximum.
- Nous avons à faire à une distribution aléatoire de boîtes, dont la longueur d'onde d'émission n'est pas contrôlée. Si le mode est trop étroit spectralement, la probabilité de trouver une boîte à l'intérieur du mode sera très faible. Pour cela, il faut donc trouver un compromis sur le facteur de qualité, pour satisfaire à la fois la première et cette dernière condition.

Pour dessiner cette structure, nous avons effectué des simulations FDTD (Finite Difference Time Domain) à deux dimensions à partir du logiciel libre d'accès Meep, permettant de simuler l'évolution du champ électrique dans une structure en fonction du temps. Nous avons simulé une structure contenant 24 paires de miroirs de Bragg sous le plan de boîtes. Les simulations consistent en la mesure du facteur de qualité de la cavité et du flux du vecteur de Poynting (représentant la puissance émise) du champ créé par un dipôle situé au centre de la cavité. Pour ces simulations nous avons fait varier les paramètres suivants (figure 2.3 (a)) :

- Le nombre de paires de miroirs de Bragg au dessus du plan de boîtes.
- La largeur des rubans gravés.
- La profondeur de gravure à partir du plan de boîte pour une structure avec 12 miroirs de Bragg supérieurs.
- Le profil de la gravure (incurvé ou rectiligne).

La figure 2.3 (b) montre l'évolution du flux du vecteur de Poynting en fonction du nombre de paires de miroirs de Bragg, pour trois largeurs de guide :  $1 \mu\text{m}$  (courbe noire),  $1,25 \mu\text{m}$  (courbe bleue) et  $1,5 \mu\text{m}$  (courbe rouge). On remarque que la structure semble être optimale pour un guide de  $1,25 \mu\text{m}$  de large et 14 paires de miroirs de Bragg. En effet, en augmentant le nombre de paires de miroirs, on améliore le facteur de qualité et le dipôle émet alors perpendiculairement au plan des couches ; l'intensité mesurée augmente. Cependant, lorsque le nombre de paires supérieures se rapproche du nombre de paires inférieures, bien que le facteur de qualité continue d'augmenter, le signal est réparti alors de manière équilibrée dans les deux directions, vers le substrat et dans le sens de détection ; l'intensité mesurée diminue. La largeur des guides agit sur le confinement du mode dans la structure, mais aussi sur le cône d'émission en sortie. Nous avons calculé qu'un guide est monomode pour une largeur de  $0,5 \mu\text{m}$ , mais pour un guide étroit, le cône d'émission devient plus grand, et le signal collecté diminue. De manière qualitative, on comprend que l'efficacité globale sera un compromis entre le

couplage à l'excitation (guide monomode étroit) et l'efficacité de la détection (guide large avec un angle d'émission plus faible).

La figure 2.3 (c) représente le facteur de qualité (courbe noire) ainsi que le flux du vecteur de Poynting (courbe bleue) en fonction de la profondeur de gravure, pour une structure possédant 12 paires supérieures. Nous voyons que plus la gravure est profonde, et plus le facteur de qualité augmente, ce qui s'explique par le fait que le mode de la cavité s'étend sur cinq paires de miroirs de Bragg ( $1,5 \mu\text{m}$  environ). Si la gravure n'est pas suffisamment profonde, le confinement du champ est alors moins bon, et le facteur de qualité diminue. Pour cette structure déséquilibrée, on remarque alors que plus le facteur de qualité augmente, plus la collection du signal augmente également, l'émission se faisant préférentiellement dans le mode de la cavité.

Un autre paramètre important est la forme des rubans qui dépend du type de gravure effectuée. Celle-ci a une influence importante sur le mode guidé et sur l'efficacité d'extraction. En effet, nos simulations (qui ne sont pas présentées ici) montrent que plus les bords des rubans sont abrupts, plus l'efficacité d'extraction est élevée et mieux est défini le mode guidé.

Enfin, la figure 2.3 (d) montre le champ électrique émis par un dipôle, dans un guide de  $1,2 \mu\text{m}$  de large avec 14 paires supérieures, gravé sur 4 paires en dessous du plan de boîtes. Afin de s'approcher au mieux des formes réelles observées sur les images MEB, cette simulation a été réalisée avec une courbure de ruban très légère. On montre ainsi que le champ se propage préférentiellement dans la direction de collection du signal et que les pertes, notamment par les flancs du guide, sont minimisées.

Les premières structures que nous avons réalisées (échantillons S2 et S3) possèdent douze paires de miroirs de Bragg supérieures et 24 paires inférieures, que nous avons élaborées en collaboration avec C. Diederichs au LPA dans le cadre d'un projet ANR (Extreme) actuellement en cours :

- Du point de vue de la croissance des boîtes quantiques, les deux échantillons S2 et S3 sont identiques.
- S3 possède un gradient d'épaisseur au niveau des miroirs de Bragg. Cela permet d'ajuster au mieux spectralement, le mode de cavité avec l'émission des boîtes. En effet, très souvent, sur des zones importantes de l'échantillon, le mode de la cavité n'est pas accordé à la longueur d'onde d'émission des boîtes, ce qui ne permet pas d'optimiser l'efficacité d'extraction. D'autre part, cela rend les expériences très longues jusqu'à ce que l'on trouve le bon objet d'étude. Ainsi, suivant la position sur l'échantillon S3, on peut avoir une variation jusqu'à 20 nm de la longueur d'onde centrale du mode de cavité, ce qui rend beaucoup plus confortable la recherche de boîtes.
- Plusieurs largeurs de guide ont été gravées sur l'échantillon S2 :  $0,5$ ;  $1$ ;  $1,5$  et  $2 \mu\text{m}$ . Nous avons remarqué que l'intensité de photoluminescence des boîtes dans les guides de  $1,5$  et  $2 \mu\text{m}$  est plus intense, mais que dans les guides de  $2 \mu\text{m}$

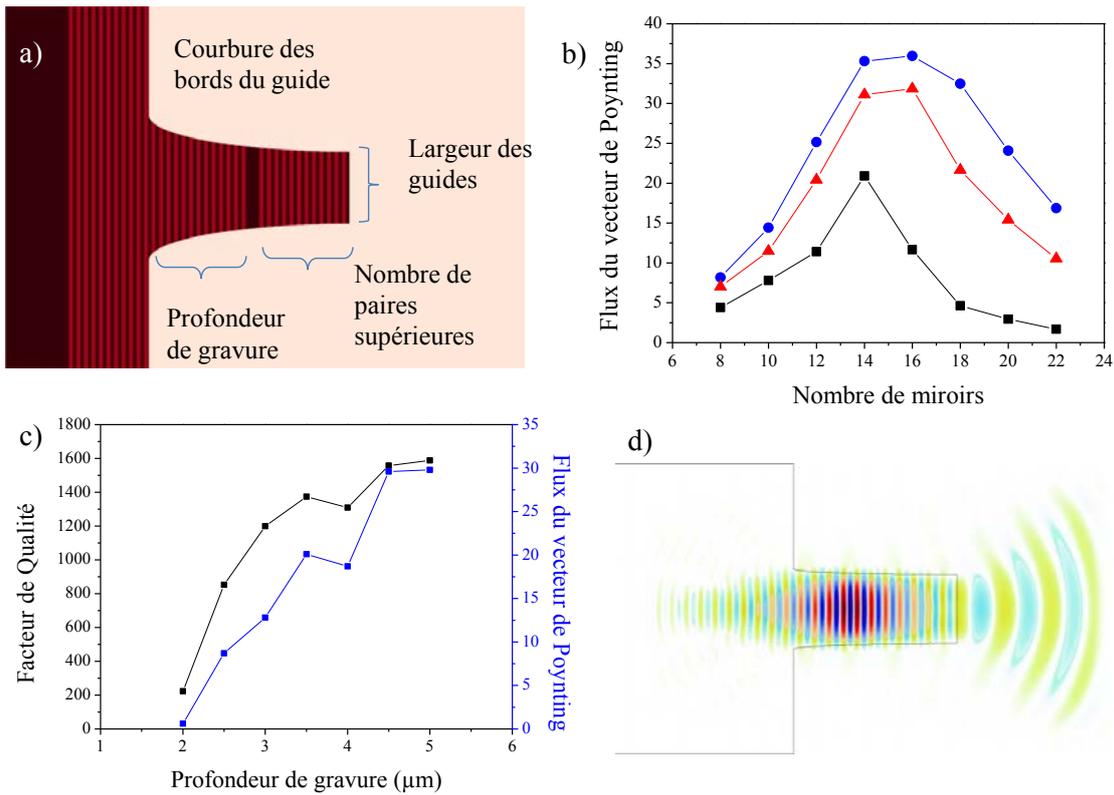


FIGURE 2.3 – a) Schéma de la structure et des différents paramètres utilisés pour les simulations. b) Évolution du flux du vecteur de Poynting en fonction du nombre de miroirs de Bragg supérieure, pour trois largeurs de guide :  $1 \mu\text{m}$  (courbe noire),  $1,25 \mu\text{m}$  (courbe bleue) et  $1,5 \mu\text{m}$  (courbe rouge). c) Évolution du facteur de qualité (noir) et du flux du vecteur de Poynting (bleu) pour une structure contenant 12 paires supérieures en fonction de la profondeur de gravure. d) Simulation du champ électromagnétique émis par le dipôle dans la structure en régime stationnaire.

plusieurs modes optiques peuvent être excités. Pour l'échantillon S3 nous avons donc décidé de réaliser des gravures de 1, 1,2 et  $1,5 \mu\text{m}$  de large.

- L'ajout de miroirs de Bragg et la nécessité de graver à des profondeurs supérieures à  $3 \mu\text{m}$ , pour avoir un bon facteur de qualité, pose un problème quant à l'utilisation d'une gravure chimique comme celle utilisée pour l'échantillon S1. Afin d'avoir des bords de guides abrupts, la génération d'échantillons suivante (S2 et S3) a été gravée dans un bâti d'ICP (Inductively Coupled Plasma), permettant aussi d'avoir des gravures profondes.
- Enfin, la contrainte sur le facteur de qualité, qui ne doit pas être trop élevé afin d'avoir un mode spectral large, nous pousse à trouver un compromis sur la profondeur de gravure. Nous avons choisi de graver jusqu'à quatre paires en dessous du plan de boîtes.

La figure 2.4 (a) montre un schéma de la structure, et la figure (b) montre une image MEB d'une coupe d'un des guides d'onde, de largeur  $1,5 \mu\text{m}$ . Notons que la procédure de gravure a été finalisée par une passivation de la surface des guides, consistant à oxyder l'aluminium à la surface, permettant de protéger les surfaces de l'échantillon.

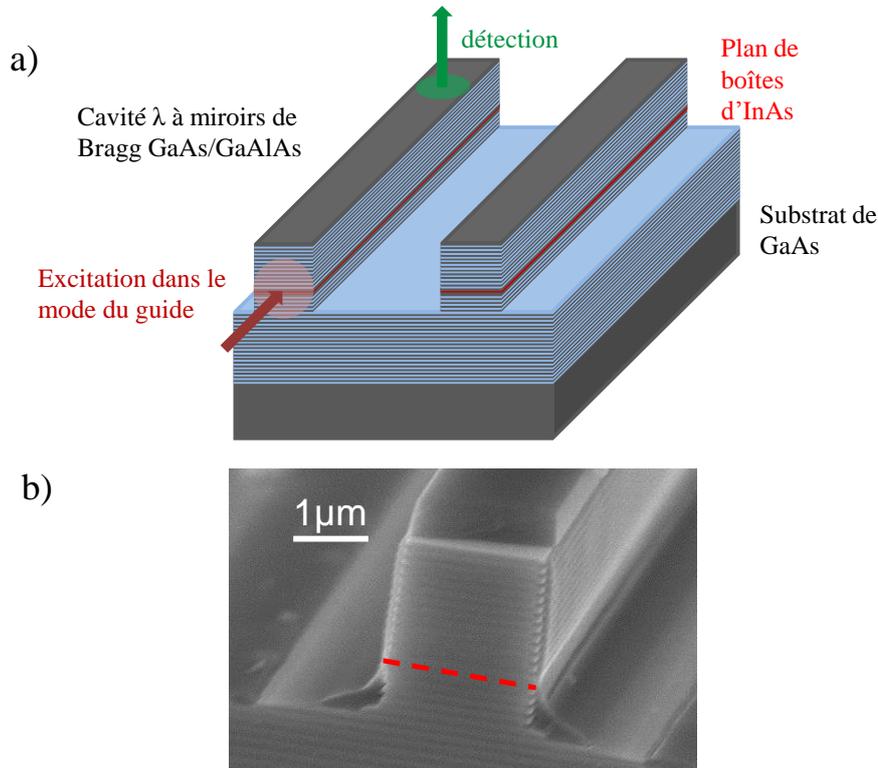


FIGURE 2.4 – Echantillons S2 et S3 : a) Schéma de la structure du guide d'onde b) Image MEB d'une coupe transversale d'un guide d'onde. Les pointillés représentent le plan de boîtes.

### 2.1.2 Micro-photoluminescence

Les expériences de micro-photoluminescence ( $\mu\text{-PL}$ ) consistent en l'étude spectrale de boîtes quantiques uniques, que nous pouvons réaliser de deux façons grâce à notre montage. En géométrie usuelle, le même objectif de microscope, situé à l'extérieur du cryostat est utilisé pour l'excitation et la détection. La taille de la tache de focalisation est limitée par la diffraction, qui est de l'ordre du  $\mu\text{m}^2$  aux longueurs d'ondes étudiées. Le laser n'excite alors qu'un nombre limité de boîtes, dont on collecte le signal. En géométrie guidée, ou croisée, le laser est focalisé sur la tranche de l'échantillon par un autre objectif de microscope. Le faisceau laser se propage alors le long d'un guide d'onde et excite les boîtes quantiques. La luminescence est collectée perpendiculairement par l'autre objectif de microscope réalisant la sélection spatiale.

## Source laser

L'excitation de l'échantillon se fait au moyen d'un laser Ti :Saphir (Mira, Coherent) accordable entre 750 nm et 950 nm. Le laser possède deux modes de fonctionnement : un mode pseudo-continu et un mode impulsionnel à verrouillage de modes (mode-locking) délivrant des impulsions de 3 à 4 picosecondes à 82 MHz, soit une impulsion toutes les 12,2 ns. Une ligne à retard dont le délai est centré sur 3 ns nous permet de générer deux impulsions pour les études de corrélations à deux photons. Enfin, le faisceau laser est focalisé sur l'échantillon au moyen d'un objectif de microscope (Mitutoyo, x50), d'ouverture numérique 0,42 et de distance de travail de 1,3 cm.

## Cryostat

L'échantillon est placé dans un cryostat à hélium liquide. Ce cryostat a été fabriqué au sein du laboratoire et des détails supplémentaires peuvent être trouvés dans les références [19, 20]. L'échantillon est collé avec de la laque d'argent sur un doigt froid en cuivre assurant le contact thermique avec le bain d'hélium et permettant de travailler à une température de 7 K. Les principales caractéristiques du cryostat sont :

- Accès à l'échantillon par trois faces : Le doigt froid tenant l'échantillon se trouve dans une cuve en verre permettant l'excitation perpendiculaire à la détection.
- Grande stabilité mécanique : les vibrations sont inférieures au  $\mu\text{m}$  pendant une longue durée.
- Contrôle de la température de l'échantillon : une résistance Allen-Bradley permet de chauffer le doigt froid sur lequel est collé l'échantillon et faire varier la température entre 7 K et 80 K. Une seconde résistance calibrée permet de contrôler cette température.

## Microscopie confocale

La luminescence est collectée au moyen d'un objectif de microscope Zeiss d'ouverture numérique 0,55 pour une distance de travail de 0,7 cm. Afin de caractériser les boîtes quantiques individuellement, nous utilisons un montage de détection confocale. Dans cette géométrie (figure 2.5), on conjugue au moyen de l'objectif de microscope de détection et d'une lentille de focale  $f=20$  cm la surface de l'échantillon avec un trou de  $100 \mu\text{m}$ . Grâce au grandissement du dispositif, on sélectionne une surface d'un  $\mu\text{m}^2$  nous permettant, compte tenu de la densité des boîtes, d'observer entre 1 et 10 boîtes. Après le dispositif confocal, la lumière est refocalisée, par une lentille de focale  $f = 4$  mm, dans une fibre optique monomode de diamètre de coeur  $3 \mu\text{m}$ . Cette fibre optique nous permet alors de diriger la luminescence vers les différents dispositifs d'analyse.

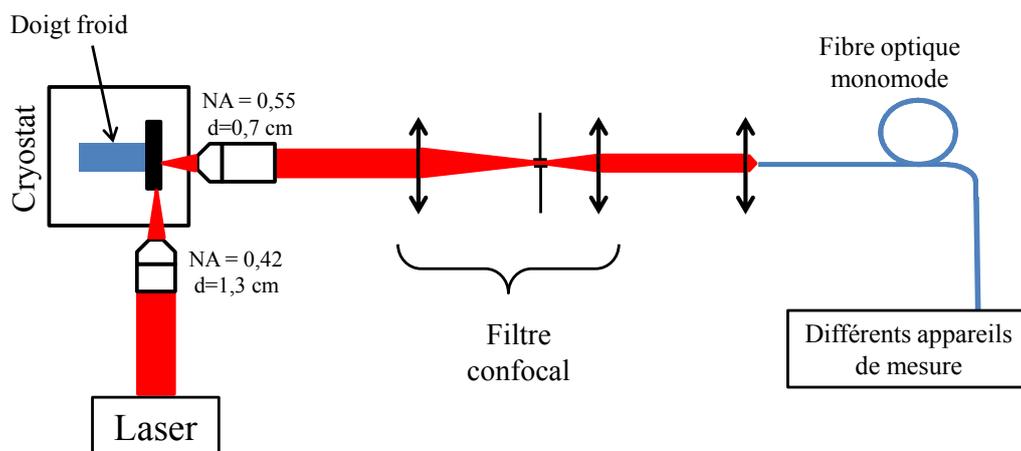


FIGURE 2.5 – Schéma du montage expérimental de microphotoluminescence en géométrie confocale.

## Dispositif de détection et analyse du signal

Pour analyser le signal collecté, nous disposons d'un spectromètre imageur (Triax 550, Jobin & Yvon) muni d'un réseau 1200 traits/mm et d'une caméra CCD (Synergie Spectrum One 2000×800, Jobin & Yvon). La limite de résolution spectrale de l'ensemble est de  $45 \mu\text{eV}$ , ce qui correspond à une résolution de  $0,03 \text{ nm}$  à l'énergie d'émission des boîtes quantiques étudiées ( $1,33 \text{ eV}$ ).

Le spectromètre possède également une sortie monocanal munie d'une fente réglable. Cette fente sélectionne en longueur d'onde une partie du signal que l'on envoie sur le montage de comptage de photons permettant d'étudier la statistique d'émission et la dynamique des porteurs (mesure de temps de vie et de temps de cohérence).

Une analyse en polarisation de la microphotoluminescence des boîtes quantiques permet d'étudier la structure fine des états radiatifs de l'exciton. En effet, comme décrit dans le chapitre 1.3.4, les diagrammes polaires nous renseignent sur la nature des états. Une lame demi-onde et un polariseur sont placés avant le spectromètre (figure 2.6). Le maximum d'efficacité du spectromètre étant obtenu pour une polarisation horizontale, l'axe du polariseur est choisi horizontal. En analysant les spectres de luminescence en fonction de l'orientation de la lame demi-onde, on trace les diagrammes polaires d'émission des boîtes.

### 2.1.3 Spectroscopie à transformée de Fourier

Le spectromètre utilisé possède une résolution spectrale de  $45 \mu\text{eV}$ , ne permettant pas d'avoir accès aux largeurs de raies, ni à la structure fine lorsque celles-ci sont inférieures à cette limite. Pendant la thèse de Catherine Tonin, ce problème avait

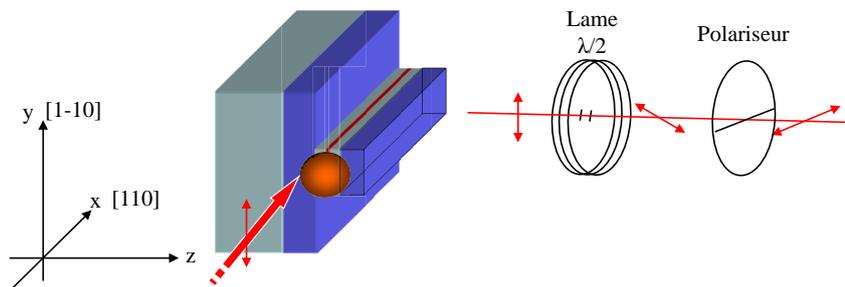


FIGURE 2.6 – Schéma du montage d'analyse de la luminescence en polarisation. Après excitation des boîtes dans le mode guidé (la polarisation du laser est indiquée par une double flèche rouge), la luminescence collectée perpendiculairement passe à travers une lame  $\lambda/2$  et un polariseur horizontal. En tournant la lame  $\lambda/2$  sur  $180^\circ$ , il est possible de mesurer le diagramme polaire d'émission des boîtes. Les doubles flèches rouges indiquent l'état de la polarisation de la luminescence à chaque étape.

été contourné en ajoutant au système de détection un interféromètre de Fabry-Perrot, mais l'absence de stabilité de celui-ci rendait les mesures particulièrement longues. Nous avons donc choisi de réaliser un dispositif de spectroscopie à transformée de Fourier, à partir d'un interféromètre de Mach-Zehnder replié (figure 2.7).

### Montage optique

La détection du signal est réalisée par une photodiode à avalanche (APD) (SPCM AQR-14, Perkin Elmer) avec un bruit inférieur à 50 coups par seconde. Le faisceau après le spectromètre est séparé en deux par une lame semi-réfléchissante. Nous avons préféré l'utilisation d'une lame séparatrice à un cube séparateur pour éviter les réflexions sur les faces perpendiculaires aux faisceaux. Un des deux faisceaux est réfléchi par un miroir mobile monté sur une platine de translation motorisée, possédant une course de 30 cm, soit un trajet lumineux de  $\pm 1$  ns aller-retour autour de la position centrale. Les miroirs utilisés sont des rétroreflecteurs à trois faces permettant de réfléchir la lumière parallèlement au faisceau incident.

Afin d'éviter la saturation des APD par la lumière ambiante, le dispositif est placé dans une chambre noire. Le bruit mesuré est alors inférieur à 100 coups par seconde.

### Principe du montage

La spectroscopie par transformée de Fourier permet d'accéder à la largeur spectrale d'une raie par la mesure de la fonction de corrélation d'ordre 1,  $g^{(1)}(\tau)$ , qui sera

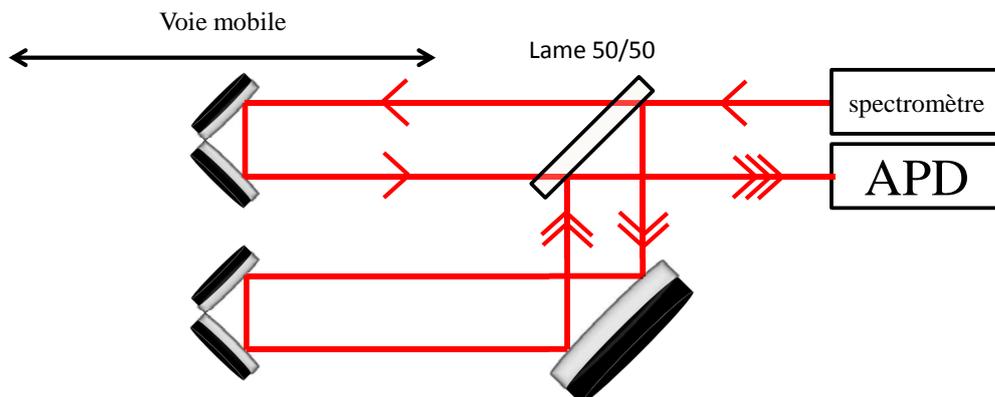


FIGURE 2.7 – Montage de spectroscopie à transformée de Fourier : interféromètre de Mach-Zehnder replié.

définie plus précisément au chapitre 4. Elle correspond à des corrélations en amplitude du champ  $E(t)$  et décrit directement l'évolution de la visibilité des franges d'interférences en fonction du retard  $\tau$  entre les deux bras de l'interféromètre. Cette fonction ne dépend pas du temps  $t$ , même en régime impulsionnel, car le signal est intégré dans le temps à l'échelle de la seconde.

La largeur spectrale d'une raie monochromatique est associée à un temps de cohérence que l'on note  $T_2$  tel que  $cT_2$  représente la longueur du train d'onde. Lorsque  $\tau$  est inférieur à  $T_2$ , les trains d'onde provenant de chacune des voies se recouvrent et les photons interfèrent. L'évolution du contraste des interférences en fonction de  $\tau$  permet alors de mesurer la longueur de cohérence des photons. Pour une onde monochromatique de pulsation centrale  $\omega_0$ , le calcul interférentiel donne une intensité de :

$$\mathcal{I}(\omega_0, \tau) = 2I_0 [1 + |g^{(1)}(\tau)| \cos \phi(\omega_0, \tau)] \quad (2.1)$$

où  $I_0 = \langle E^2 \rangle$  est l'intensité envoyée dans l'interféromètre et  $\langle \rangle$  correspond à une moyenne statistique (sur un grand nombre d'impulsions).  $\phi(\omega_0, \tau) = \arg(g^{(1)}(\tau)) = \omega_0 \tau$  est la différence de phase liée à la différence de chemin. On observe alors des franges d'interférences de période  $\omega_0$  et modulées par le contraste  $|g^{(1)}(\tau)|$ .

Dans le cas d'une raie au profil lorentzien, on trouve alors (voir chapitre 4) :

$$|g^{(1)}(\tau)| = e^{-|\tau|/T_2} \quad (2.2)$$

La mesure du contraste des interférences nous permet bien de trouver le temps de cohérence de la source de lumière étudiée.

## Calibration du montage

Afin de vérifier l'alignement du montage optique, il faut que les trains d'onde se recouvrent pour des différences de chemin supérieures à 30 cm. Le montage de spectroscopie à transformée de Fourier a été caractérisé au moyen d'un laser HeNe stabilisé en fréquence. Ce laser possède un temps de cohérence de 30 ns, soit une longueur de cohérence de 10 m. Nous nous attendons alors à mesurer un contraste de 1 sur l'ensemble de l'interférogramme.

La figure 2.8 montre l'évolution des interférences (a) et de leur contraste (b) en fonction de la différence de chemin entre les deux voies. Comme il est possible de le constater par l'irrégularité des points de la figure (a), le montage ne nous permet pas de résoudre les interférences. Le moteur de translation impose un pas minimum de  $50 \mu\text{m}$ , et l'incertitude sur la position est de l'ordre du  $\mu\text{m}$ , soit environ la longueur d'onde étudiée. La distribution des points de mesure est constituée de points aléatoires de l'interférogramme dont l'enveloppe évolue comme le contraste des interférences. L'observation de points aléatoires est alors suffisante pour retracer cette évolution. Nous mesurons ici que la variation du contraste est très faible. Le temps caractéristique correspondant à la perte de contraste est de l'ordre de 10 ns, ce qui est moins que la durée de cohérence du laser qui est de 30 ns. Cette perte peut être attribuée à un défaut d'alignement du montage. Cependant, les temps caractéristiques des phénomènes étudiés (temps de vie radiatif  $T_1$  et temps de cohérence  $T_2$ ) étant de l'ordre de la ns, nous pouvons les mesurer précisément.

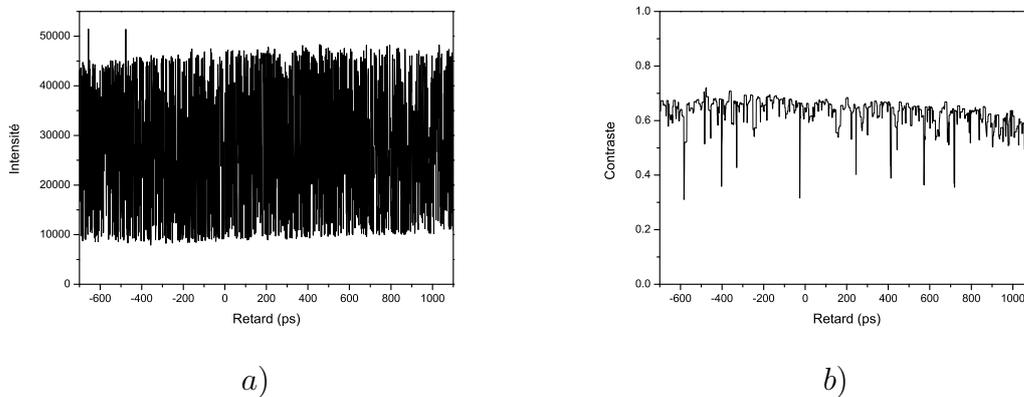


FIGURE 2.8 – a) : Interférences d'un laser HeNe stabilisé en fonction de la différence de chemin optique entre les deux voies du Mach-Zehnder. b) : Évolution du contraste des interférences.

### 2.1.4 Mesure de la statistique d'émission

Afin d'étudier la statistique d'émission des photons et caractériser l'émission de photons uniques, nous utilisons un montage de Hanbury-Brown et Twiss (HBT)(figure 2.9

(a)) qui permet de mesurer la fonction d'autocorrélation en intensité d'ordre deux,  $g^{(2)}(\tau)$  [23].

## Fonction de corrélation d'ordre 2

La fonction de corrélation d'ordre deux,  $g^{(2)}(\tau)$ , est une fonction de corrélation en intensité, contrairement à  $g^{(1)}(\tau)$  qui est une fonction de corrélation en amplitude. En optique quantique, elle correspond à la probabilité conditionnelle de détecter un photon à un instant  $(t+\tau)$  sachant qu'on a déjà détecté un photon à un instant  $t$ . Lorsque les deux photons sont émis par deux sources différentes, on parle de corrélations croisées et la mesure consiste à déterminer un lien de causalité entre l'émission d'un photon d'une source et un photon de la seconde source. Lorsque les photons sont émis par le même émetteur, on parle d'autocorrélation. Cette mesure permet d'étudier la statistique d'émission de photons d'une source unique.

Une source de photons uniques est une source purement quantique comme cela sera détaillé au chapitre 4. Pour un état nombre à  $n$  photons, on aura [91] :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{n(n-1)}{n^2} \quad (2.3)$$

On remarque alors que pour une source de photons uniques  $g^{(2)}(0) = 0$  alors que pour une source à deux photons,  $g^{(2)}(0) = 1/2$ . Bien que les photons émis par une boîte quantique ne soient pas des états nombres, car leur train d'onde n'est pas infini, les considérer comme tel ne change pas le résultat d'une expérience d'autocorrélation. Dans la pratique, on considérera qu'une source émet des photons uniques dès que  $g^{(2)}(0) < 1/2$ , valeur caractéristique de la statistique d'une source à deux photons.

## Montage de Hanbury-Brown et Twiss

Lors d'une expérience de Hanbury-Brown et Twiss, la luminescence est divisée en deux par une lame semi-réfléchissante. A chaque port de sortie, une APD détecte les photons. Elle transmet des impulsions électriques à un corrélateur (Picoharp 300, Picoquant) qui calcule les écarts entre les temps d'arrivée d'un photon sur l'APD 1 (signal *start*) et d'un photon sur l'APD 2 (signal *stop*), la résolution temporelle des APD étant de 250 ps. Ces temps sont ensuite compilés sous forme d'histogramme pendant un temps d'intégration  $T$ . Un exemple de construction d'un tel histogramme en régime impulsionnel est donné figure 2.9. Dans le cas d'une source de photons uniques, ceux-ci ne peuvent être détectés simultanément par les deux APD. Pendant le temps d'acquisition, le nombre de coïncidences va donc augmenter pour des retards multiples du taux de répétition du laser alors qu'à retard nul, le nombre de coïncidence reste nul. Ainsi les coïncidences à retard nul caractérisent le fait que la source émet des photons uniques.

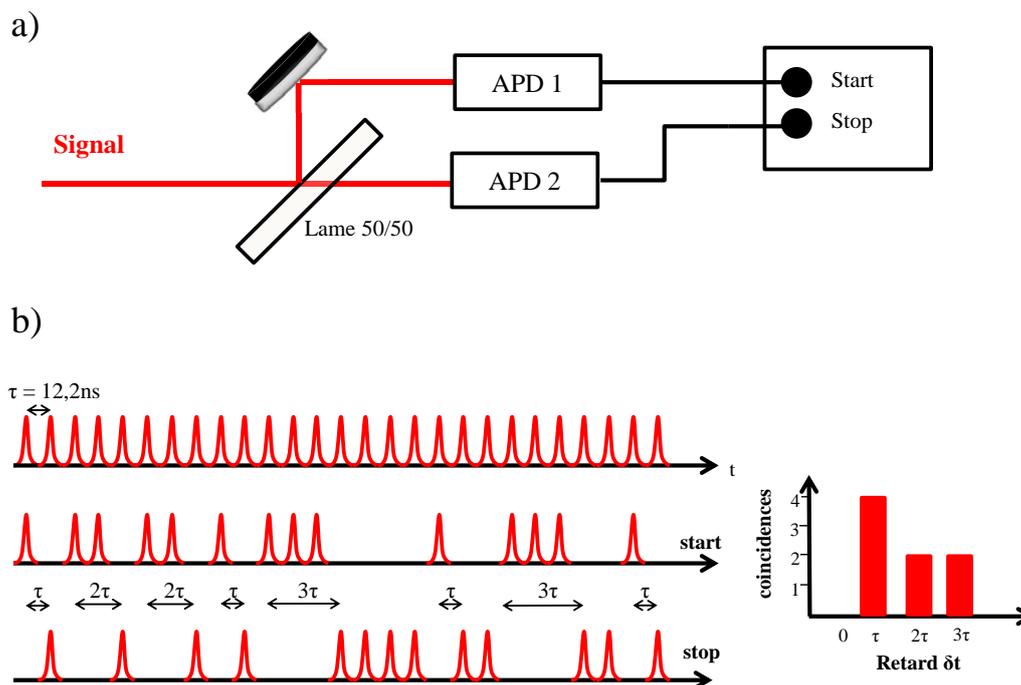


FIGURE 2.9 – a) Montage de Hanbury-Brown et Twiss pour la caractérisation de la statistique d'émission de photons et la mesure de la fonction d'autocorrélation d'ordre 2. Le signal de luminescence d'une boîte est dirigé sur une lame 50/50. Les photons de luminescence sont détectés par deux APD. Les APD transmettent un signal électrique à un corrélateur qui mesure l'écart entre les temps de détection des photons entre l'APD 1 (start) et l'APD 2 (stop). b) Expérience de Hanbury-Brown and Twiss réalisée en régime impulsif, et construction de l'histogramme des coïncidences.

Dans le cas d'une excitation non-résonante, nous excitons plusieurs boîtes quantiques en même temps. Pour étudier la statistique d'émission d'une boîte unique, il est nécessaire de filtrer préalablement la luminescence avec un spectromètre. Nous nous affranchissons alors de l'émission des autres boîtes et le laser diffusé par l'échantillon est également filtré. C'est notamment le cas lors d'une excitation à l'énergie d'absorption de la couche de mouillage : nous observons la luminescence de la couche de mouillage, très intense, ainsi que celle de toutes les boîtes se situant dans la zone d'observation. Comme nous le verrons au chapitre 3, ce problème ne se pose plus lors d'une excitation résonante, dans le schéma d'excitation guidée utilisée. Le laser est accordé à l'énergie d'une boîte précise, seule à être observée, et le processus d'absorption devient plus efficace. La puissance du laser nécessaire pour l'excitation devient alors très faible et la diffusion du laser devient négligeable devant l'intensité de luminescence de la boîte. La mesure de la statistique d'émission des boîtes quantiques sous excitation résonante est alors possible.

## 2.1.5 Spectroscopie résolue en temps

### Principe de la mesure

Pour avoir accès à la dynamique de recombinaison radiative des excitons dans les boîtes, nous avons mis en place un montage de spectroscopie résolue en temps.

Après avoir été générées par une impulsion, les paires électron-trou se recombinent radiativement avec un temps caractéristique  $T_1$ . Si le taux de répétition du laser est bien plus long que le temps de vie radiatif de la boîte et que l'impulsion est bien plus courte que le temps de vie, ce processus se répète une et une seule fois à chaque impulsion laser. En mesurant l'intensité de l'émission en fonction du temps, il est possible de déterminer la dynamique d'émission et de mesurer le temps de vie radiatif de la paire electron-trou.

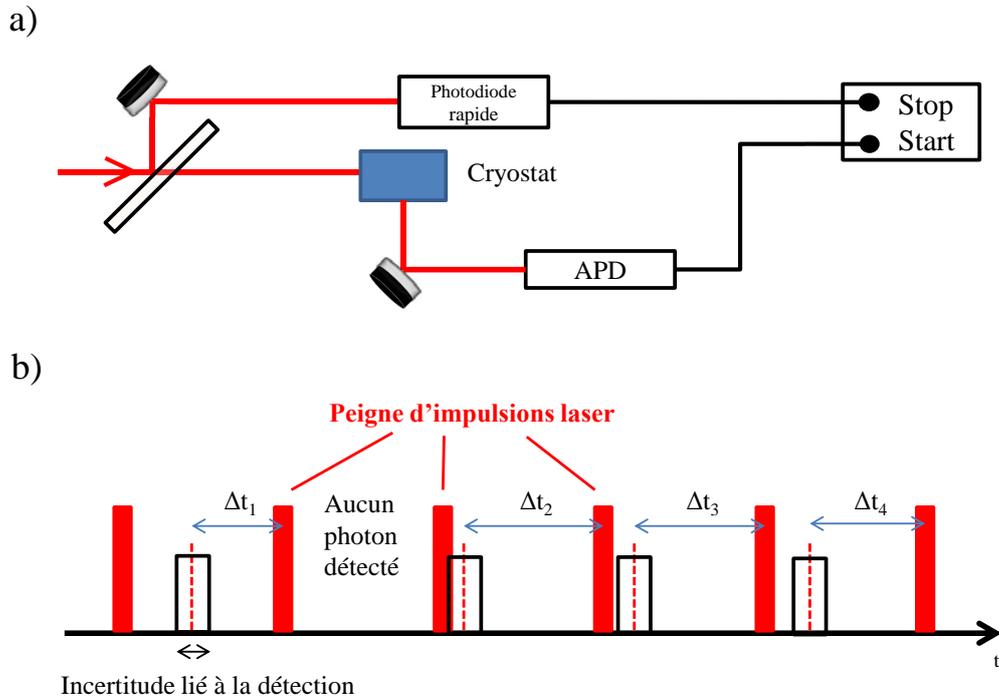


FIGURE 2.10 – a) Schéma de l'expérience de spectroscopie résolue en temps. b) Principe de la mesure résolue en temps. Le signal (pointillés rouges) est détecté par l'APD et son temps d'arrivée est comparé au peigne d'impulsions laser.

Pour réaliser cette expérience, les photons émis par la boîte sont détectés par une APD. En utilisant le même corrélateur que pour la mesure d'autocorrélation, on synchronise le temps d'arrivée de ces photons avec le temps d'arrivée des impulsions laser détectées par une photodiode rapide. Le laser que nous utilisons possède un jitter de quelques picosecondes, et l'incertitude sur l'écart entre deux impulsions successives

est très inférieure à la résolution temporelle de nos détecteurs (250 ps). Les temps d'arrivée des photons sont alors comparés à un peigne référence d'impulsions laser servant d'horloge. L'écart calculé est compté entre le photon et l'impulsion laser suivante (la luminescence déclenche un *start* et le laser un *stop*). On construit alors un histogramme des temps d'arrivées, nous donnant la probabilité d'émission des photons en fonction du temps. Avec ce protocole, pour chaque déclenchement *start*, nous sommes assurés d'avoir un *stop*, et l'ensemble des points mesurés seront pris en compte dans l'histogramme.

*Remarque* : Si le temps était mesuré avec le protocole inverse où l'impulsion déclenche un *start* et le photon de luminescence un *stop* (ce protocole semble plus intuitif), la probabilité de détection d'un photon sur un temps inférieur au taux de répétition du laser dépendrait alors du nombre de photons détectés. Nous ne détectons au plus que  $3 \cdot 10^5$  photons de luminescence par seconde pour  $8 \cdot 10^7$  impulsions par seconde. Le temps moyen d'arrivée des photons serait donc d'environ 300 fois le temps séparant deux impulsions (12,2 ns), soit 3  $\mu$ s. L'histogramme serait alors composé d'évènements étalés sur une fenêtre temporelle large, et le temps d'acquisition deviendrait très long pour avoir, dans la fenêtre 0-12,2 ns, un rapport signal sur bruit suffisant au traitement des données.

### Réponse du système de détection {APD + carte d'acquisition}

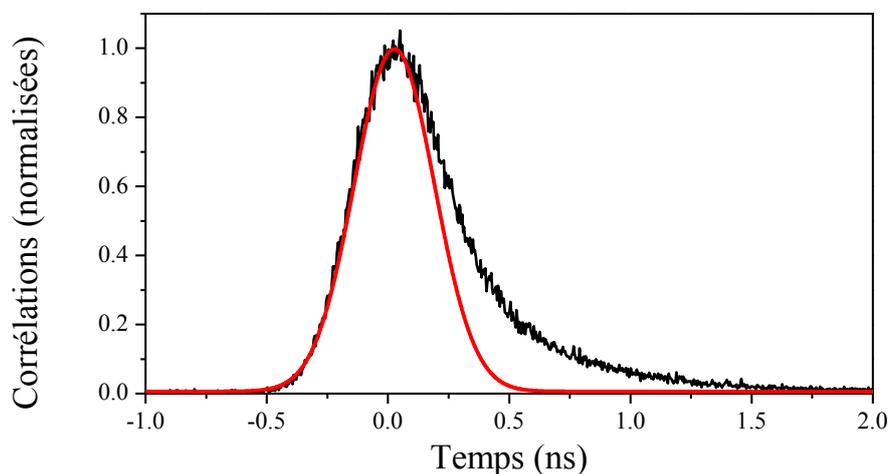


FIGURE 2.11 – Caractérisation de la réponse du système par la mesure du profil d'une impulsion laser. Les données d'acquisition en noir sont ajustées par une gaussienne en rouge.

La réponse caractéristique du système est mesurée en envoyant les impulsions laser d'une durée de 3 ps sur une APD. L'histogramme mesuré est représenté figure 2.11 et est ajusté par une gaussienne. La largeur de la gaussienne est de 350 ps ce

qui est bien supérieur à la durée réelle d'une impulsion (2 à 5 ps) et correspond à la convolution entre le temps de réponse de l'APD (250 ps) et le temps de lecture de la carte d'acquisition du corrélateur. On remarque que l'ajustement est correct pour le temps de montée mais que le temps de descente du signal est supérieur à celui de l'ajustement, et possède un temps caractéristique de 300 ps. Comme le temps de vie radiatif des boîtes est supérieur à cette décroissance, on peut considérer en première approximation que les histogrammes que nous obtenons résultent de la convolution de la gaussienne d'ajustement par la décroissance exponentielle mesurée.

### 2.1.6 Caractérisation de l'interféromètre fibré

L'interféromètre fibré a été monté pour réaliser la mesure du taux d'indiscernabilité des photons (voir chapitre 4). Cette mesure nécessite que l'interféromètre de Mach-Zehnder utilisé ne modifie pas, entre autres, les propriétés de polarisation de la lumière. Les premières mesures réalisées en espace libre avec le montage FTIR ont montré que les rétrorélecteurs ne sont pas parfaits, modifiant ainsi le mode spatial des deux bras de l'interféromètre et la polarisation des photons. Pour remédier à ces problèmes, nous avons monté un interféromètre de Mach-Zehnder fibré, montré figure 2.12 (a), assurant le recouvrement parfait des modes optiques. Cet interféromètre comporte deux coupleurs fibrés dont les coefficients en réflexion/transmission ont été mesurés et valent 61/39 et 60/40, à la longueur d'onde d'émission des boîtes quantiques (915-930 nm).

Cependant, la biréfringence des fibres optiques entraîne une ellipticité de la polarisation, rendant à nouveau les photons discernables. En appliquant des contraintes sur la fibre, modifiant localement sa biréfringence, il est possible de compenser cette ellipticité et d'avoir la même polarisation en sortie des deux bras de l'interféromètre fibré. Pour cela nous utilisons des contrôleurs fabriqués au laboratoire constitués de deux blocs dans lesquels s'enroule la fibre (voir figure 2.12 (b)). Chaque bras fibré de l'interféromètre passe par un de ces contrôleurs et leur orientation induit les contraintes nécessaires pour ajuster la polarisation. La polarisation ainsi définie dans chaque bras est linéaire avec un contraste supérieur à 99%.

Le contraste a été mesuré en envoyant un laser à la longueur d'onde de la luminescence, avec une différence de marche nulle ( $\tau = 0$  ns) entre les deux voies de l'interféromètre (voir figure 2.12 (a)). On mesure alors le contraste des interférences sur chacune des APD. Avec les valeurs des coefficients en transmission et réflexion des coupleurs, le contraste attendu est de 0,9 sur une APD et de 1 sur l'autre. Nous avons mesuré respectivement un contraste de 0,8 et 0,9. On en déduit donc que le contraste intrinsèque de l'interféromètre est de 0,9. Cette perte de contraste est probablement liée aux pertes de signal dans les différents composants (connecteurs de fibre, coupleurs fibrés).

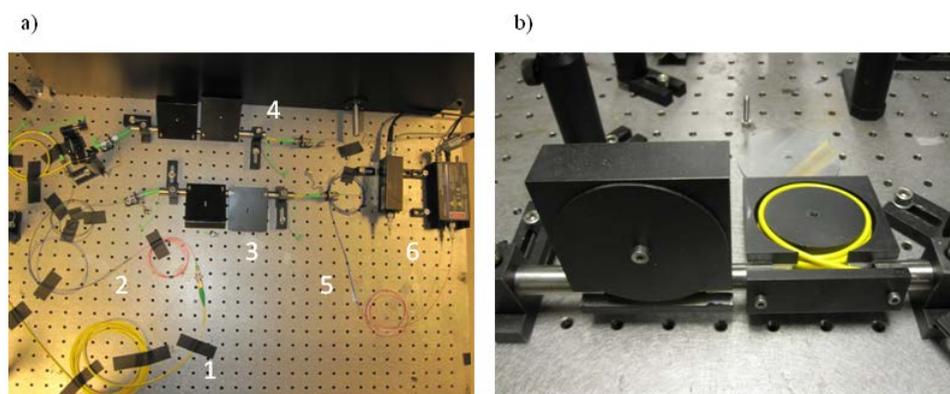


FIGURE 2.12 – a) Photographie de l'interféromètre fibré avec les contrôleurs de polarisation. 1) La fibre achemine les photons de luminescence à l'interféromètre. 2) Le premier coupleur fibré. 3) Bras court de l'interféromètre. 4) Bras long de l'interféromètre, avec un retard  $\tau_0 = 3$  ns. 5) Second coupleur fibré. 6) APD réalisant la détection. b) Photographie des contrôleurs de polarisation.

## 2.2 Caractérisation des boîtes quantiques

Dans cette partie nous allons détailler les résultats expérimentaux permettant de caractériser les boîtes que nous avons étudiées. Après avoir observé expérimentalement plusieurs dizaines de boîtes, les résultats présentés dans cette partie, ainsi que dans la suite de ce manuscrit, ont été principalement obtenus sur 5 boîtes typiques : deux provenant de l'échantillon S1 (S1A et S1B), deux de l'échantillon S2 (S2A et S2B) et une de l'échantillon S3 (S3A). Les principales différences entre ces boîtes, liées à l'excitation résonante, seront détaillées au chapitre 3. D'autres boîtes sont occasionnellement mentionnées, mais ces boîtes ont généralement un signal de luminescence trop faible ou un temps de cohérence trop court pour être étudiées de manière plus approfondie. Dans toute cette partie, les mesures sont effectuées avec une excitation non-résonante avec la transition optique de l'exciton, et accordée à l'énergie de la couche de mouillage, en accordant le laser à 875 nm.

### 2.2.1 Étude spectrale

Sur la figure 2.13 sont représentés en échelle semi-logarithmique trois spectres typiques de boîtes pour chaque échantillon S1, S2 et S3 correspondant aux boîtes S1A, S2A, et S3A, réalisés à 7 K en géométrie confocale. Ils sont présentés ici à la même échelle aussi bien en longueur d'onde qu'en intensité. La différence de densité de boîtes dans ces échantillons ainsi que la présence ou non d'une cavité (de largeur spectrale comprise entre 5 à 10 nm) se traduit spectralement par un nombre de raies différent. Chaque raie du spectre de  $\mu$ -PL représente un (ou plusieurs) niveau d'énergie

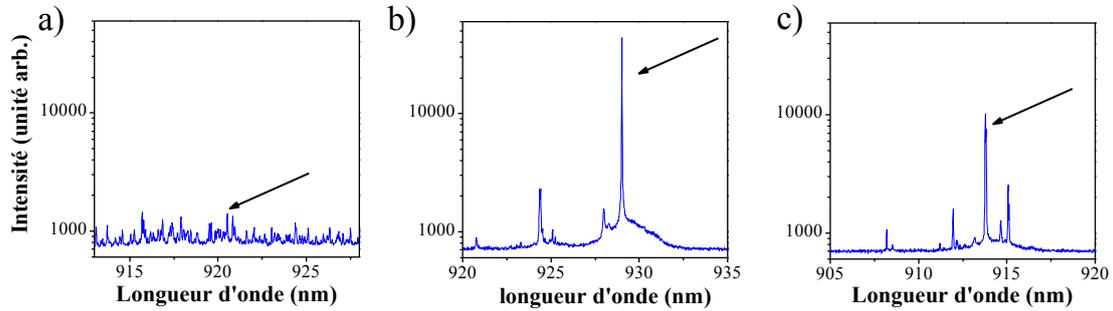


FIGURE 2.13 – Spectres typiques de photoluminescence non-résonnante des boîtes S1A (a), S2A (b) et S3 (c). Ces spectres sont représentatifs des échantillons dont ils sont tirés, en terme de densité de boîtes et d'intensité de luminescence. Les flèches sur chaque spectre indiquent la raie excitonique de la boîte qui a été étudiée.

d'une même boîte ou de boîtes différentes. Dans le spectre (a), le grand nombre de raies permet d'affirmer que plusieurs boîtes émettent, et la transition optique qui a été étudiée à cet endroit de l'échantillon est indiqué par une flèche. Au contraire, compte tenu de la densité de boîtes dans l'échantillon S2, il est possible de penser que chacune des raies du spectre (b) correspond à des niveaux d'énergie d'une même boîte quantique. Pour le spectre (c), provenant de l'échantillon S3, le mode de cavité est mieux accordé avec le maximum de densité spectrale des boîtes. Nous avons pu identifier clairement trois boîtes différentes. On remarque que la présence de la cavité pour les échantillons S2 et S3 a permis d'augmenter considérablement l'intensité du signal, passant d'une moyenne de 1000 coups/s à 30000 coups/s.

### Comportement dépendant de la puissance d'excitation

A basse puissance d'excitation, le laser d'excitation génère une paire électron-trou dans la couche de mouillage. Cette paire peut se recombiner dans la boîte et émettre un photon à l'énergie excitonique. Lorsque l'on excite à plus forte puissance, il est possible de générer plusieurs paires qui relaxent dans la boîte. L'intensité de luminescence de la raie excitonique augmente avec la probabilité d'avoir une paire électron-trou dans la boîte. On atteint le régime de saturation lorsque cette probabilité est proche de 1 et l'intensité n'augmente plus. [92]

A ce schéma simple, il est bon d'ajouter le fait que les charges constituant les paires (électrons ou trous) peuvent relaxer indépendamment de la couche de mouillage vers la boîte, et il est possible qu'une charge seule soit piégée dans la boîte, l'autre

se trouvant piégée dans un défaut proche de la boîte. Ceci peut entraîner la création d'excitons dits chargés, i.e {2 électrons-1 trou} ou {2 trous-1 électron} (voir figure 2.14 (a)).

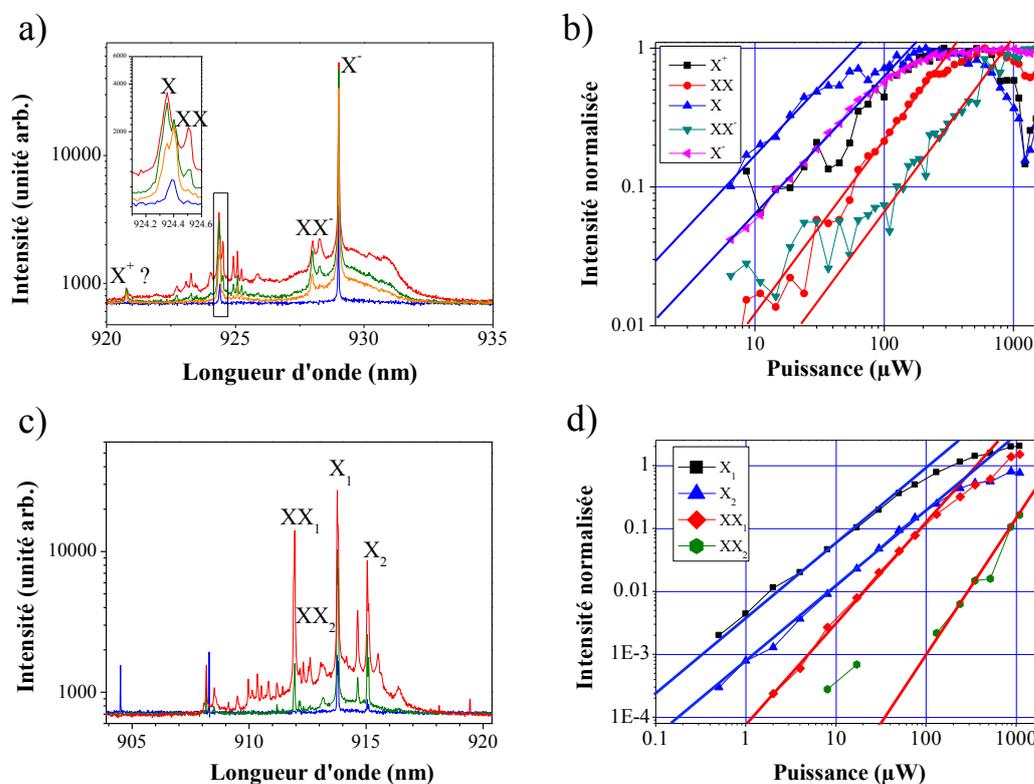


FIGURE 2.14 – a) Spectre d'émission de la boîte S2A pour quatre puissances d'excitation. La nature de la raie excitonique est identifiée par les lettres correspondantes. En encart est représenté un agrandissement des raies X et XX. b) Évolution de l'intensité des 5 raies identifiées en échelle logarithmique. Les droites en bleu ont une pente 1 indiquant un comportement linéaire et les droites en rouge ont une pente 1,3 indiquant un comportement surlinéaire. c) et d) similaires à a) et b) pour l'échantillon S3.  $X_1$  et  $XX_1$  correspondent à des transitions de la boîte S3A ;  $X_2$  et  $XX_2$  proviennent d'une autre boîte. Les droites en bleu indiquent un comportement quasi-linéaire (pente 1,1), et les droites en rouge un comportement surlinéaire (1,7 pour la boîte 1 et 2,1 pour la boîte 2).

Les modèles d'équations de bilan en régime stationnaire montrent que la dépendance en puissance est liée au nombre de charges apportées dans la boîte [93]. Ainsi lors de l'apport d'une paire électron-trou, la luminescence augmente linéairement (pente 1 en échelle logarithmique) alors que l'évolution sera quadratique (pente 2) pour l'apport de 2 paires. La raie du biexciton apparaît lorsque l'intensité de luminescence de l'exciton sature. Dans la pratique, le régime impulsionnel modifie cette dynamique. Le biexciton commence à être visible avant la saturation de l'exciton et l'augmentation de son intensité, bien que surlinéaire, n'est pas obligatoirement quadratique comme l'ont

montré d'autres expériences [94]. Ce résultat est corroboré par le modèle de population aléatoire développé par Grundmann *et al* et les travaux théoriques qui en sont dérivés [93, 95, 96].

La figure 2.14 montre l'évolution en puissance de la luminescence des boîtes S2A (a) et S3A (c). L'évolution en puissance des différentes raies (2.14 (b)) montre que trois d'entre elles ont un comportement linéaire. Ces trois raies peuvent être identifiées soit comme des excitons neutres ( $X$ ) soit comme des excitons chargés ( $X^+$  ou  $X^-$ ). Compte tenu de la faible densité de boîtes observée sur cet échantillon, il est possible de penser qu'il s'agit de raies appartenant à la même boîte. En comparant les écarts en énergie à ce que l'on peut trouver dans la littérature [64, 65, 97], on peut identifier les différentes raies comme l'exciton neutre  $X$  au centre, l'exciton chargé positivement  $X^+$  à haute énergie (entre 4 et 6 meV, ici 5 meV), et l'exciton chargé négativement  $X^-$  à plus basse énergie (entre -5 et -8 meV, ici -6 meV). Les deux autres raies identifiées possèdent un comportement surlinéaire avec la puissance d'excitation et peuvent être identifiées comme des raies biexcitoniques. La raie dont l'intensité varie avec une pente 1,3 avec la puissance d'excitation, est associée au biexciton ( $XX$ ), et à plus basse énergie on identifie la raie biexcitonique chargée négativement ( $XX^-$ ). Notons tout de même que l'interprétation de la nature des raies  $X^+$  et  $XX^-$  reste ici spéculative, faute de contrôle de l'état de charge des boîtes. Deux autres interprétations sont possibles pour expliquer cette raie d'émission : il peut s'agir d'un exciton chargé négativement chaud (i.e un des électrons est à une énergie de confinement supérieur) ou plus simplement d'une raie provenant d'une autre boîte.

Sur la seconde étude en puissance présentée figure 2.14 (c) et d), plusieurs boîtes sont visibles. En effet, à très basse puissance d'excitation, on observe deux raies  $X_1$  (914 nm) et  $X_2$  (915 nm) qui, vu l'écart en énergie laissent penser à des raies provenant de l'émission de deux boîtes quantiques distinctes. Lorsque la puissance d'excitation augmente, deux autres raies apparaissent à plus haute énergie :  $XX_1$  (912 nm) et  $XX_2$  (913 nm). Le comportement très surlinéaire de ces raies (pente 1,5 et 2,1 respectivement avec la puissance d'excitation) permet d'identifier ces raies aux biexcitons respectifs. Pour les autres raies, il est presque impossible dans le cadre d'une étude préliminaire de déterminer de quel type de transition il s'agit. Seul un troisième exciton a été identifié à 913 nm, qui provient probablement d'une boîte légèrement en dehors de la zone d'observation de l'objectif de microscope.

### Comportement dépendant de la température

L'interaction d'une boîte quantique avec son environnement, notamment avec les phonons, dépend de la température d'étude. La figure 2.15 montre l'évolution de l'énergie d'émission et de la largeur de la raie de luminescence dominant le spectre à basse puissance d'excitation, c'est-à-dire  $X^-$ , de la boîte S2A en fonction de la température. Les raies de luminescence ont été ajustées par un profil lorentzien. Les carrés

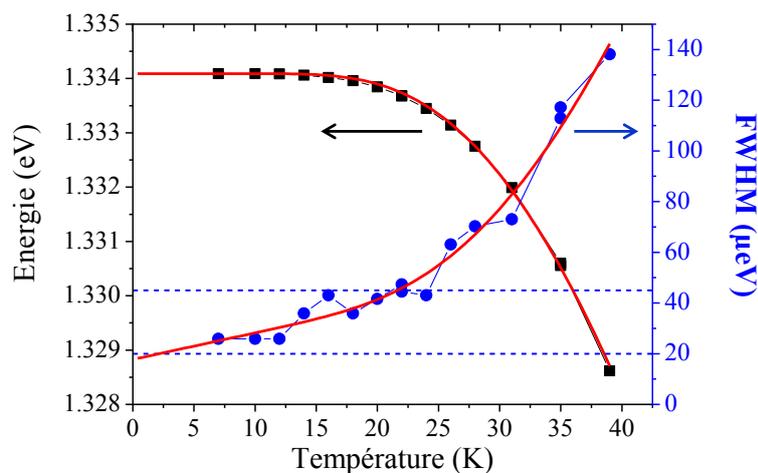


FIGURE 2.15 – Dépendance en température de l'énergie d'émission (noir) et de la largeur à mi-hauteur (bleu) de la raie d'émission  $X^-$  de la boîte S2A. Les deux lignes pointillées bleues représentent les limites de résolution : c'est-à-dire l'écart entre deux pixels de la CCD (45  $\mu\text{eV}$ ) et la limite donnée par les ajustements (20  $\mu\text{eV}$ ).

en noir représentent l'évolution de l'énergie centrale en fonction de la température. On remarque qu'à basse température (en dessous de 20 K), l'énergie d'émission de la raie ne change pas, alors qu'à partir de 20 K, la raie se décale vers les basses énergies. Ce comportement peut être expliqué par la variation d'énergie du gap avec la température donné par la loi empirique de Varshni [98]. A partir de cette loi, un modèle rendant mieux compte de la dépendance en température a été proposé par O'Donnell *et al* [99] qui a déterminé l'évolution du gap dans des matériaux massifs. Celle-ci est décrite par la loi :

$$E(T) = E(0) - \alpha \left[ \coth \frac{\beta}{T} - 1 \right] \quad (2.4)$$

où  $\alpha$  et  $\beta$  sont des constantes dépendant du matériau. Les données ont été ajustées à partir de cette équation en laissant les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  libres. On peut comparer ces résultats à ceux donnés dans [99] pour le GaAs (tableau 2.16) ainsi que les données compilées dans la référence [100], pour l'InAs massif et les boîtes InAs/GaAs. On remarque alors que la valeur que nous mesurons pour le paramètre  $\alpha$  est supérieure à celle attendue dans les boîtes, mais reste proche de la valeur donnée dans le matériaux massif de GaAs. Le paramètre  $\beta$  montre une valeur inférieure à celle donnée dans la littérature mais qui reste intermédiaire entre les valeurs obtenues pour les matériaux massifs de GaAs et d'InAs.

L'évolution de la largeur à mi-hauteur (FWHM) avec la température a été représentée par les points en bleu dans la figure 2.15. La ligne en pointillés bleus à

45  $\mu\text{eV}$  correspond à la limite de résolution du système de détection. Des ajustements lorentziens effectués sur des raies fines possédant des largeurs de 2  $\mu\text{eV}$  ont donné une largeur de 20  $\mu\text{eV}$ . Cette valeur donne la résolution du montage pour la mesure de la FWHM lorsque l'on connaît le profil de la raie. Les données ont été ajustées à partir d'un modèle qui prend en compte le couplage de la boîte avec la matrice cristalline qui l'entoure, c'est-à-dire l'interaction avec les phonons [18, 77, 101]. L'évolution de la FWHM  $\Gamma$  s'écrit :

$$\Gamma(T) = \Gamma(0) + aT + \frac{b}{\exp(\Delta E/kT) - 1} \quad (2.5)$$

où  $\Gamma(0)$  représente la FWHM à température nulle,  $a$  le couplage avec les phonons acoustiques, et  $b$  le couplage avec les phonons optiques.  $\Delta E$  est une énergie d'activation liée aux phonons optiques du GaAs. L'ajustement montre un bon accord avec les données et les valeurs des paramètres ajustés sont en bon accord avec la littérature (tableau 2.16).

Cependant, la limite de résolution du montage ne permet pas de connaître la valeur de la largeur à température nulle, ce qui augmente l'incertitude sur les autres valeurs mesurées. Ainsi, nous savons seulement que  $\Gamma(0)$  est compris entre 2  $\mu\text{eV}$ , la limite radiative où  $T_2 = 2T_1$  et la limite de résolution 20  $\mu\text{eV}$ . La mesure du temps de cohérence par transformée de Fourier sur cette boîte et à 7 K, donne également une largeur de  $20 \pm 3 \mu\text{eV}$ , n'apportant malheureusement alors aucune information quant à l'évolution de la courbe aux températures inférieures. Ainsi, compte tenu de ces remarques, nous concluons que le paramètre  $a$  caractérisant le couplage aux phonons acoustiques est compris entre 0 et 2  $\mu\text{eV}$ , ce qui correspond aux valeurs mesurées sur différentes boîtes par Kammerer *et al* [18]. Le couplage aux phonons optiques apparaît à plus haute température et les valeurs ajustées présentent alors une incertitude plus faible, bien que tout de même élevée. Nous trouvons  $b = 3 \pm 1 \text{ meV}$  qui est en bon accord avec les valeurs trouvées par N'Guyen *et al* [81], alors que la prédiction théorique calculée par T. Grange donne 0,013 meV [75]. L'énergie d'activation mesurée est de  $15 \pm 5 \text{ meV}$ . Cette énergie est inférieure à l'énergie des phonons optiques dans le GaAs qui est de 36 meV. La valeur mesurée est néanmoins comparable aux résultats de calculs théoriques [76, 102] ainsi qu'aux résultats expérimentaux donnant "l'énergie moyenne des phonons" dans l'article [99], et dans les références [18, 103].

## 2.2.2 Étude du diagramme polaire d'émission

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, les différents états d'une boîte quantique se différencient par leur structure fine. L'anisotropie des boîtes conduit à une levée de dégénérescence des excitons neutres, ainsi qu'à une émission polarisée linéairement. L'étude de la polarisation des raies de luminescence fournit donc une identification supplémentaire de ces raies.

	Mesures	GaAs (ref [99])	InAs (ref [100])	InAs/GaAs (refs [100] et [18])
$\alpha$	$83 \pm 15$ meV	80,1 meV	29 meV	60 meV
$\beta$	$67 \pm 10$ K	155 K	60 K	87 K
$a$	$0 - 2 \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$	-	-	$0,1-2,1 \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$
$b$	$4 \pm 2$ meV	-	-	qq meV
$\Delta E$	$15 \pm 5$ meV	-	-	20-28 meV

FIGURE 2.16 – Paramètres donnés par l'évolution en température, et comparés aux valeurs que l'on trouve dans la littérature.

L'étude de la boîte S2A, est représentée sur la figure 2.17 ((a), (b) et (c)). L'étude spectrale (figure 2.17 (a)) pour une polarisation horizontale (en rouge) et une polarisation verticale (en vert) montre une structure fine de la raie que nous avons identifiée comme l'exciton neutre, alors que celle du trion négatif ne présente pas de structure fine, comme attendu [70]. Les diagrammes polaires des figures (b) et (c) montrent respectivement l'évolution en polarisation de l'intensité de la luminescence des deux raies de la structure fine de l'exciton et celle de l'exciton chargé. Les données en rouge (respectivement en vert), ainsi que leur ajustement, montrent l'évolution de la raie horizontale (respectivement verticale). La somme de ces intensités donnent les données en bleu. La figure 2.17 ((d), (e), (f) et (g)) montre l'étude réalisée sur la boîte S3A. Ici plusieurs excitons sont observés ainsi que leur biexciton associé. Ne sont montrés ici que les raies X1, X2 et XX1 pour des raisons de lisibilité. En accord avec les règles de sélection, le biexciton possède une structure fine inversée par rapport à l'exciton, i.e l'état de plus basse énergie est polarisé verticalement alors que celui de l'exciton est horizontal.

Nous pouvons faire plusieurs remarques :

- Lorsque il y a un mélange de trou lourds et de trous légers, les diagrammes polaires ne sont plus circulaires, comme nous l'avons défini au chapitre 1, et le contraste du diagramme polaire est relié au paramètre de mélange  $\beta$  (cf equation 1.16). Dans une même boîte, le mélange mesuré doit être le même pour toutes les raies d'émission. Ainsi, pour le spectre (a), les raies que nous avons identifiées précédemment comme l'exciton neutre ( $\beta = 0,03$ ) et l'exciton chargé négativement ( $\beta = 0,27$ ) n'appartiennent pas à la même boîte.
- La raie que nous appelons  $X^-$  sur le spectre (a) ne présente pas de structure fine. Hors résonance, il n'est pas possible de différencier un exciton neutre, dont l'écart en énergie des deux raies de la structure fine serait inférieur à la résolution, d'un exciton chargé. Nous verrons que l'étude à la résonance de cette raie d'émission confirme qu'il s'agit d'un exciton chargé.
- Dans une même zone d'observation (inférieure au  $\mu\text{m}^2$ ), des études précédentes

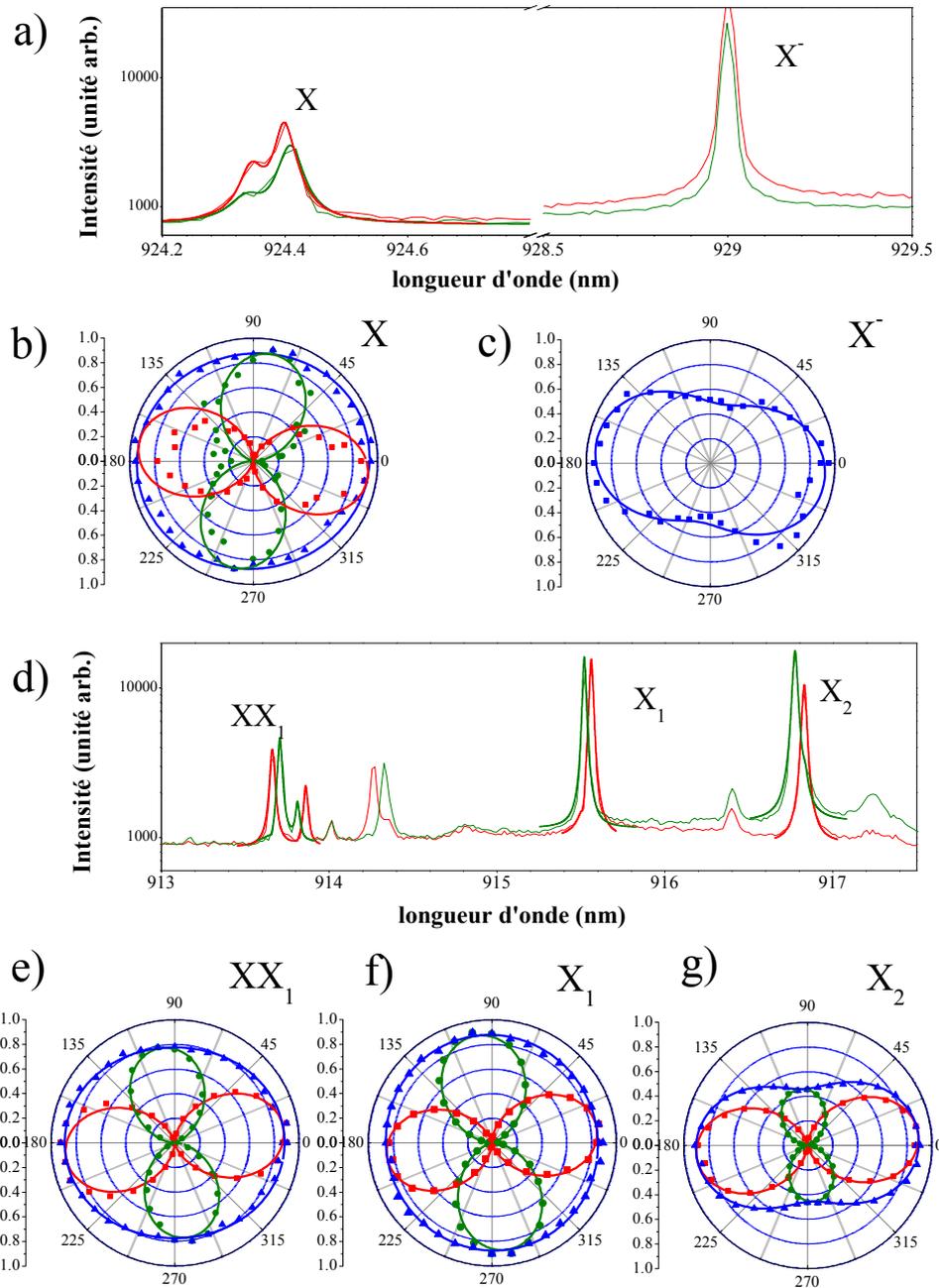


FIGURE 2.17 – Étude de la luminescence des boîtes en fonction de la polarisation. a) Spectres de luminescence en échelle semilogarithmique de la boîte S2A. En rouge : polarisation horizontale ; en vert polarisation verticale. b) Diagrammes polaires d'émission de la raie X de la boîte S2A. Chaque point correspond au max d'intensité de la raie ajustée par une lorentzienne, pour chaque angle de la lame  $\lambda/2$ . En bleu : somme des deux contributions.. c) idem pour la raie X<sup>-</sup> de la boîte S2A. d) Spectres de luminescence en échelle semilogarithmique de la boîte S3A, dans les deux directions de polarisation. e), f) et g) respectivement, diagrammes polaires des raies XX<sub>1</sub>, X<sub>1</sub> et X<sub>2</sub>.

[21] ont montré que les boîtes possèdent une structure fine semblable (même splitting et même angle d'anisotropie). On peut vérifier cela, sur le spectre d), où les écarts en énergie de la structure fine sont de l'ordre de 0.05 nm soit 70  $\mu eV$ . Pour les trois excitons neutres, la raie de plus basse énergie est polarisée horizontalement.

- Pour les raies du spectre (d), les excitons et leurs biexcitons ont un  $\beta$  similaire ( $\beta = 0,05$  pour les raies  $X_1$  et  $XX_1$ , et  $\beta = 0,25$  pour les raies  $X_2$  et  $XX_2$ ). Cependant, seules des mesures de corrélations croisées exciton-biexciton permettraient de confirmer que les raies appartiennent à une même boîte.

L'étude des diagrammes polaires nous permet donc connaître la nature des états ( $X$  ou  $X^-$ ) et déterminer le mélange trou-lourd trou-léger des états étudiés. Cependant, la mesure de mélange trous lourds-trous légers implique que les états propres dans les boîtes quantiques ne sont pas orthogonaux. Dans ce cas, une boîte ne peut être simplement considérée comme un système à deux niveaux, mais apparait comme une structure plus complexe [21].

### 2.2.3 Émission de photons uniques

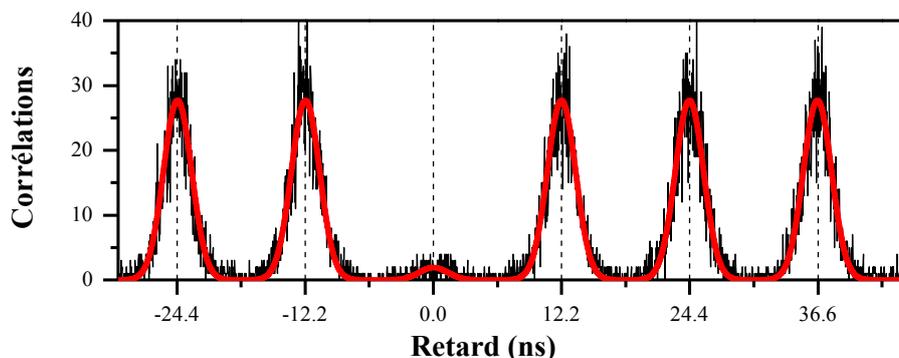


FIGURE 2.18 – Mesure de Hanbury-Brown et Twiss d'une boîte excitée hors résonance. Les données (en noir) sont ajustées par une somme de gaussiennes espacées du taux de répétition du laser de 12,2ns.

La figure 2.18 représente l'histogramme des corrélations effectuées sur l'intensité de photoluminescence de la raie excitonique de la boîte quantique S2A. Cet histogramme a été obtenu avec 33000 coups/seconde sur chaque APD et 10 minutes de temps d'acquisition. Il est ajusté par des gaussiennes pour tenir compte de la réponse

des APD. La fonction d'ajustement est donnée par la fonction :

$$f(t) = C \left( \sum_{k \neq 0} e^{-\frac{(t-k\tau_L)^2}{\sigma^2}} + g^{(2)}(0)e^{-\frac{t^2}{\sigma^2}} \right)$$

où  $\tau_L$  est le taux de répétition du laser,  $\sigma$  la largeur à mi-hauteur des gaussiennes et  $C$  une constante de normalisation. La valeur de  $g^{(2)}(0)$  caractérise la statistique d'émission des photons de la boîte quantique étudiée, et nous trouvons  $g^{(2)}(0) = 0,07$ . Pour plusieurs boîtes quantiques que nous avons étudiées, nous avons trouvé un  $g^{(2)}(0) < 0,15$ . Or la valeur théorique d'un émetteur à deux photons étant de 0,5, on en conclut que les boîtes quantiques excitées hors résonance sont des très bons émetteurs de photons uniques.

## 2.2.4 Temps de vie radiatif

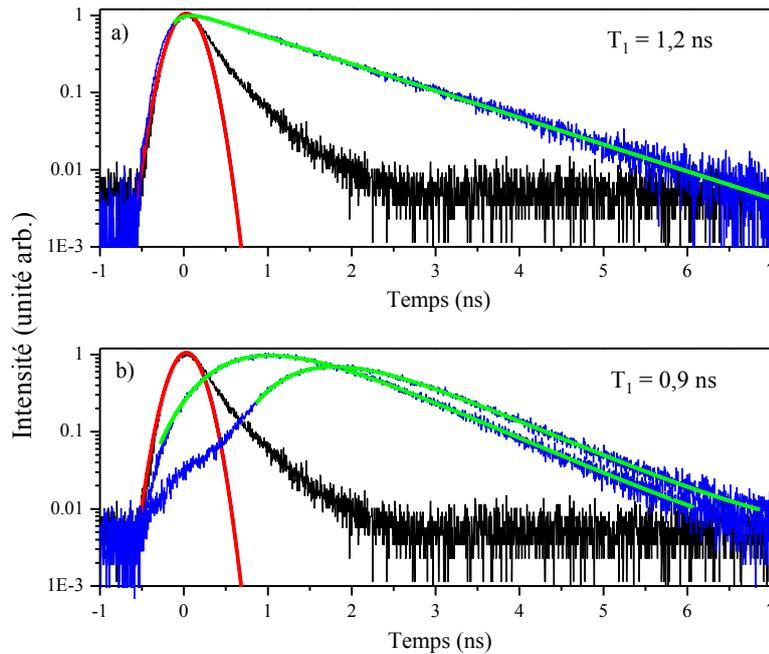


FIGURE 2.19 – a) Luminescence résolue en temps de la boîte S1A (données en bleu), à une puissance inférieure à la saturation. En noir, détection du laser qui donne la référence temporelle ainsi que son ajustement gaussien en rouge. L'ajustement en vert est donné par l'équation 2.6 représentant la cascade radiative. On trouve  $T_1 = 1,2$  ns. b) Etude résolue en temps de la boîte S2A pour deux puissances supérieures à la saturation. On trouve  $T_1 = 0,9$  ns.

La dynamique de la recombinaison de l'exciton est accessible via la mesure du temps de vie radiatif. La luminescence d'une boîte quantique est filtrée par le spectromètre et seule la raie excitonique que l'on veut étudier est sélectionnée. La figure 2.19

représente les temps de vie radiatifs mesurés des boîtes quantiques S1A (a) et S2B (b). Sur les deux graphiques, les courbes en noir représentent l'histogramme obtenu pour le laser seul, donnant la limite de résolution temporelle, ainsi que l'origine des temps. Pour toutes les expériences de photoluminescence résolue en temps, nous n'avons pas observé de décroissance sur des temps très longs, caractéristiques de la contribution des états noirs  $J = \pm 2$  de l'exciton. Tous nos résultats peuvent être ajustés par des décroissances mono-exponentielles.

En fonction de la puissance d'excitation utilisée, on injecte dans le système plus ou moins de paires électron-trou. A une puissance d'excitation inférieure à la saturation de la boîte quantique, une seule paire relaxe dans la boîte et émet un photon. Dans ce cas, la luminescence de la boîte a lieu quelques picosecondes seulement après l'excitation (figure 2.19 (a)), avec un déclin exponentiel décroissant. A plus forte puissance d'excitation, au delà de la saturation, plus d'une paire électron-trou relaxe dans la boîte (figure 2.20 (a)). Les différents complexes excitoniques vont alors se recombiner radiativement jusqu'à ce qu'il ne reste plus qu'un exciton dans la boîte (figures (b) et (c)) qui pourra alors à son tour se recombiner en émettant un photon (d). Ce phénomène, appelé cascade radiative [85], est responsable d'un temps de montée et d'un décalage temporel de la décroissance par rapport à l'origine.

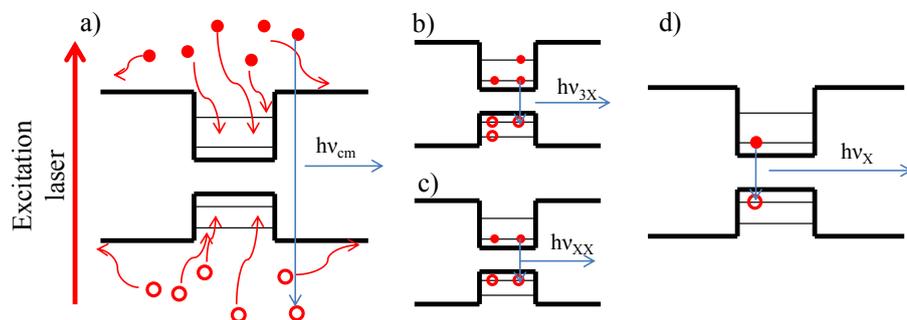


FIGURE 2.20 – Exemple de cascade radiative lorsque le laser génère un grand nombre de paires dans la couche de mouillage (a). Certaines paires peuvent se recombiner radiativement (flèche bleu verticale) en émettant un photon (flèche bleu horizontale) à l'énergie de la couche de mouillage ( $h\nu_{cm}$ ). D'autres relaxent non radiativement (flèches rouges) hors de la boîte observée, ou peuplent les niveaux de plus basse énergie de la boîte (b). Chaque paire va successivement se recombiner (b et c), émettant un photon à une énergie différente de celle de l'exciton qui est le dernier à émettre (d).

Le spectre de photoluminescence résolu temporellement (figure 2.19 (a)) a été obtenu à une puissance inférieure à la saturation, alors que la figure (b) a été obtenue pour deux puissances d'excitation supérieures à la saturation. Les données ont été ajustées en tenant compte de la cascade radiative. L'évolution de l'intensité de lumi-

nescence au cours du temps a été modélisée par Santori *et al* [85] puis par Elvira *et al* [49] :

$$I(t) = \mu e^{-t/\tau_X} e^{-\mu e^{-t/\tau_B}} \quad (2.6)$$

où  $\mu$  est le nombre de paires dans la boîte,  $\tau_X$  le temps de vie radiatif de l'exciton et  $\tau_B$  le temps caractéristique nécessaire aux autres paires pour se recombiner. Cette fonction nous a permis d'ajuster les courbes de la figure 2.19 et d'en trouver les différents paramètres. Les temps de vie mesurés ne dépendent pas de la puissance d'excitation. Pour l'échantillon S1, on trouve des temps de vie variant de 1 ns à 1,3 ns. L'échantillon S2 donne des temps de vie compris entre 0,8 ns et 0,95 ns. Les différences entre les deux échantillons peuvent s'expliquer par la présence de la cavité à miroirs de Bragg qui modifie le taux d'émission spontanée par effet Purcell. Cela correspondrait à un facteur de Purcell de  $F_P = T_{S1}/T_{S2} = 1,3$ .

A partir du modèle utilisé, nous pouvons aussi déduire le nombre moyen de paires contenues dans la boîte après le passage de l'impulsion. Dans le cas de la figure 2.19 a), on trouve 0,2 paires, ce qui correspond bien au régime attendu à basse puissance. Pour l'autre boîte, et à plus forte puissance, on trouve respectivement 3,2 et 9 paires. Nous n'avons pas cherché à identifier spectralement les raies de luminescence correspondant à ces états multi-excitoniques. Cependant, ces états ont été identifiés comme étant responsables de l'apparition d'un fond continu sur les spectres [49], que nous observons également (figure 2.14). Ces états forment un quasi-continuum et se recombinent radiativement sur des temps courts. Ils sont probablement à l'origine du "rebond" que nous observons aux temps courts de la luminescence résolue en temps ( $< 1$  ns) à plus forte puissance (figure 2.19 (b)).

## 2.2.5 Mesure du temps de cohérence des boîtes quantiques

La figure 2.21 montre l'évolution du contraste des interférences pour la boîte S2B à deux puissances d'excitation différentes. Le temps de cohérence mesuré pour cette boîte est de l'ordre de 200 ps. Il varie d'une boîte à l'autre entre 100 ps et 400 ps, lorsqu'on excite dans la couche de mouillage. Pour ces boîtes, le temps de vie correspondant est de l'ordre de 900 ps, et on constate donc que le temps de cohérence n'est pas limité radiativement ( $T_2 \neq 2T_1$ ). Ainsi, d'autres processus de déphasage doivent entrer en jeu :

- La relaxation non-radiative des porteurs de charge, de la couche de mouillage au niveau de plus basse énergie de la boîte, se fait par couplage aux phonons et cause une perte de la cohérence du système. Elle est liée au mode d'excitation mais ne dépend pas a priori de la puissance d'excitation.
- L'excitation non-résonante crée des charges supplémentaires qui vont peupler les différents défauts présents éventuellement autour de la boîte. Ce piégeage va entraîner la création d'un champ qui modifie légèrement l'énergie de la raie

entre deux excitations. Ainsi, les photons générés par deux impulsions successives peuvent ne pas avoir la même énergie, et la raie de luminescence sera élargie par diffusion spectrale [104]. Un brouillage des interférences apparaît alors, même si les paquets d'onde des photons ont même longueur de cohérence. Ainsi, pour les deux puissances d'excitation utilisées lors des mesures présentées sur la figure 2.21, le nombre de charges excédentaires est différent, entraînant un élargissement plus important à plus forte puissance. On obtient alors un temps de cohérence à basse puissance de  $290 \pm 30$  ps, et un temps plus court à plus forte puissance, de  $190 \pm 20$  ps.

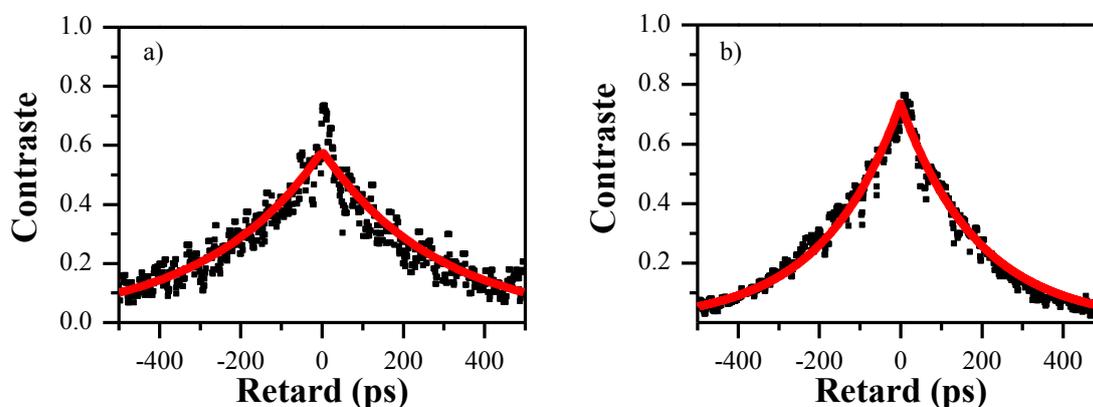


FIGURE 2.21 – *Contraste des interférences obtenues sur une boîte quantique de l'échantillon S2 excitée dans la couche de mouillage à deux puissances différentes. a) Pour une excitation à  $380 \mu W$ ,  $T_2=190$  ps. b) Pour une excitation à  $120 \mu W$ ,  $T_2=290$  ps.*

Il apparaît alors que la cohérence du système est préservée lorsque peu de paires électron-trou sont créées dans et autour de la boîte. Ce résultat est corroboré par les observations récentes de O. Gazzano *et al.* [86].

### Mesure de la structure fine de l'exciton

La spectroscopie par transformée de Fourier permet également de mesurer le splitting de structure fine des états de l'exciton et dépasser ainsi la résolution du spectromètre. Pour confirmer cela, nous présentons ici (figure 2.22) un exemple de boîte quantique (S3A) où l'écart en énergie de la structure fine, de  $65 \mu eV$ , est résolu spectralement et que nous comparons à une mesure par transformée de Fourier. Nous avons mesuré les temps de cohérence de chacune des raies indépendamment, et obtenu  $T_2^H = 170 \pm 20$  ps pour la raie polarisée horizontalement, et  $T_2^V = 170 \pm 30$  ps pour la raie polarisée verticalement.

Lorsque la luminescence des deux raies est envoyée dans l'interféromètre, on observe des battements dont la période est liée à l'écart en énergie entre les deux raies. Dans le cas de deux raies lorentziennes non cohérentes, la figure d'interférence est alors obtenue à partir de l'expression :

$$I = 4I_0 \left[ 1 + e^{-\frac{|\delta|}{cT_2}} \cos \left( \frac{\pi \Delta \lambda}{\lambda_0^2} \delta \right) \cos \left( \frac{2\pi}{\lambda_0} \delta \right) \right]$$

où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde moyenne,  $\Delta \lambda$  est l'écart en longueur d'onde entre les deux raies et  $\delta = c\tau$  est la différence de marche dans l'interféromètre. Dans ce cas, l'évolution du contraste qui permet d'ajuster les données est donnée par :

$$C = e^{-\frac{|\delta|}{cT_2}} \left| \cos \left( \frac{\pi \Delta \lambda}{\lambda_0^2} \delta \right) \right|$$

Dans notre cas, nous trouvons  $\Delta \lambda_{FTIR} = 0.042$  nm à comparer à la mesure spectrale  $\Delta \lambda_{spectre} = 0.04$  nm. Compte tenu de la résolution du spectromètre, il n'est pas possible d'avoir une mesure plus précise de l'écart entre les deux raies. Au contraire, la précision de la mesure interférométrique est ici de l'ordre de 1% et le splitting de structure fine mesuré est de  $65 \mu\text{eV}$ . Grâce à cette mesure il est possible en théorie de mesurer des écarts en énergie inférieurs à  $5 \mu\text{eV}$ .

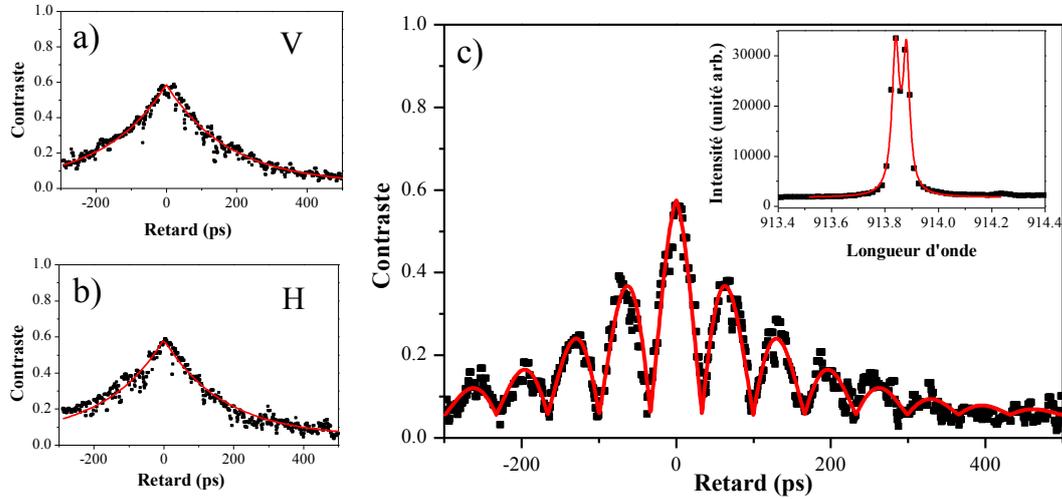


FIGURE 2.22 – Mesure du temps de cohérence de l'exciton neutre de la boîte S3A pour lequel on résout la structure fine. a) (resp. b) ) Evolution du contraste des interférences de la luminescence de l'exciton polarisé verticalement (resp. horizontalement). Le temps mesuré est de 170 ps. c) Mesure avec les deux raies interférant. La fréquence des battements est de 65 ps correspondant à un écart en longueur d'onde de 0,42 nm, et en énergie de  $65 \mu\text{eV}$ . L'encart montre le spectre composé des deux raies. L'écart en longueur d'onde mesuré est de 0,4 nm.

## 2.3 Conclusion

Comme nous venons de le voir, l'excitation non-résonnante dans la couche de mouillage est un bon outil pour étudier et caractériser les boîtes quantiques. Nous avons ainsi pu caractériser 3 structures différentes :

- Une structure comportant des guides d'onde unidimensionnels, sans miroirs de Bragg et gravés chimiquement.
- Une structure avec des guides et des miroirs de Bragg, gravés par ICP.
- Une structure avec des guides, des miroirs de Bragg et un gradient d'épaisseur de cavité permettant de sonder différentes longueurs d'onde d'émission, gravés par ICP.

Nous avons mis en évidence que l'ajout de la cavité et la gravure ICP permettent d'améliorer l'efficacité de collection du signal d'un facteur 20 à 50 en fonction des boîtes. Nous avons ainsi pu étudier des boîtes quantiques uniques et mesurer leur caractéristiques physiques (dépendance en puissance et température, diagramme polaire, statistique d'émission, temps de vie et de cohérence).

Ce régime d'excitation s'avère par contre vite limité si l'on souhaite utiliser les boîtes quantiques pour des expériences d'optique quantique. Dans ce cas, la cohérence du système est un problème crucial pour l'émission de photons indiscernables. Pour des photons émis par une même boîte, cette condition est limitée par le profil temporel des photons qui est déterminé par la cohérence. Si les photons ont une cohérence proche de la limite radiative, i.e  $T_2 = 2T_1$ , alors il sera possible de réaliser des expériences d'optique quantique avec une fidélité maximale. Le mode d'excitation, à l'énergie de la couche de mouillage, est responsable de la perte de cohérence du système. Nous allons voir dans les deux chapitres suivants que l'excitation résonante permet de préserver la cohérence des boîtes quantiques.



# Chapitre 3

## Étude des boîtes quantiques à la résonance

Ce chapitre est consacré à l'étude des boîtes quantiques uniques sous excitation résonante. Un des avantages de ce mode d'excitation est qu'il permet de s'affranchir de la relaxation des porteurs depuis la couche de mouillage vers l'état excité de la boîte et ainsi peupler directement l'état quantique que l'on souhaite adresser. On montre alors que le temps de cohérence des états dans la boîte quantique augmente. L'excitation à la résonance des boîtes quantiques nécessite que l'énergie du laser soit accordée à l'énergie de la transition, ce qui constitue une difficulté expérimentale majeure. Il est donc indispensable d'adapter la géométrie expérimentale pour s'affranchir au maximum de la lumière provenant du laser, tout en collectant de manière efficace la luminescence d'une boîte quantique.

Au début des années 2000, ce problème a été abordé en contournant la question de la luminescence, et en étudiant les boîtes quantiques via des mesures de transmission différentielle [105] ou de photocourant [106]. Cela permet notamment d'étudier les propriétés électroniques des boîtes, ainsi que les interactions avec l'environnement [107, 108]. Les premières études de luminescence sous excitation strictement résonante sur boîtes quantiques uniques datent de 2007-2008 [16, 15]. Différentes approches expérimentales ont été utilisées pour l'étude de la luminescence : certains groupes ont choisi de filtrer en polarisation le laser [109, 110] et l'atténuer d'un facteur  $10^7$  ; d'autres groupes ont choisi de découpler spatialement l'excitation et la détection du signal soit en insérant les boîtes dans une microcavité planaire [15, 88, 111], soit en utilisant une géométrie guidée [16]. Dans notre groupe, nous avons développé depuis plusieurs années cette géométrie en optique guidée qui permet de découpler spatialement et de manière efficace le laser et la luminescence [16, 22].

Dans ce chapitre, nous démontrerons tout d'abord que la géométrie guidée est bien adaptée pour l'étude à la résonance d'objets uniques et qu'elle permet de s'affranchir du laser diffusé par l'échantillon. Nous verrons ensuite que le couplage résonant entre le laser impulsionnel et la boîte entraîne un régime de couplage fort. Une des

caractéristiques de ce régime est l'apparition d'oscillations de Rabi. Nous verrons enfin que l'excitation résonante permet de préserver la cohérence des états étudiés, mais que des processus de décohérence tels que le couplage aux phonons ou l'environnement électrostatique fluctuant subsistent. Ces phénomènes peuvent être étudiés au moyen des oscillations de Rabi, corrélées à des mesures de temps de vie et de cohérence des états considérés.

### 3.1 Observation d'une boîte unique à la résonance

Lors d'une étude à la résonance, l'énergie du laser d'excitation est ajustée à celle de la transition que nous souhaitons étudier. La géométrie guidée utilisée impose au laser une polarisation dans un plan perpendiculaire à l'axe des guides (fig. 3.1 (a)). Par ailleurs, les états de l'exciton des boîtes sont polarisés dans le plan ( $x=[110]$ ,  $y=[1\bar{1}0]$ ), perpendiculairement à l'axe de croissance  $z=[001]$  (fig. 3.1 (b)). Seule la polarisation  $y$  du laser est alors susceptible d'exciter un état excitonique.

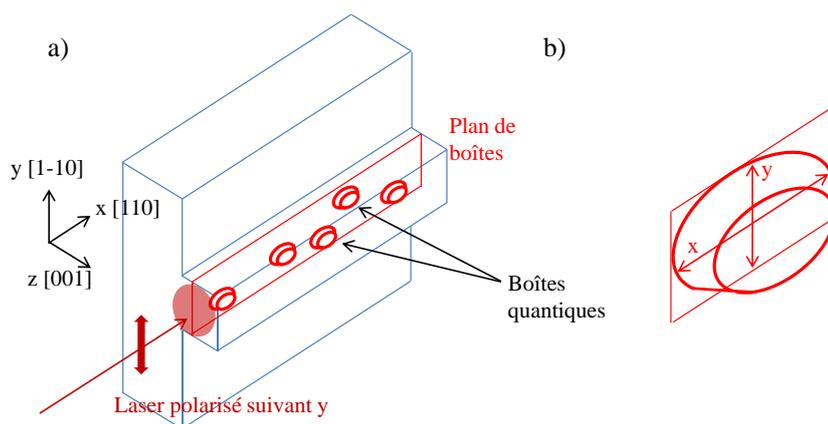


FIGURE 3.1 – a) Schéma de principe de l'excitation à la résonance. Les boîtes sont représentées par des cônes tronqués placés dans un guide. Le laser est polarisé suivant la direction  $y$ . b) Schéma d'une boîte quantique en forme de cône tronqué à base elliptique. La luminescence des états propres de la boîte est polarisée linéairement suivant les axes  $x$  et  $y$  du plan de croissance.

#### 3.1.1 Spectres de microphotoluminescence

La figure 3.2 montre un spectre typique de luminescence résonante. Ce spectre a été obtenu sur la boîte S3A. Trois contributions peuvent être identifiées : la luminescence de la boîte, le laser diffusé à la même énergie et une contribution due à l'émission assistée par phonons acoustiques, à plus basse énergie. La luminescence de la boîte a été ajustée par une fonction lorentzienne (bleu) et le laser par une fonction gaussienne

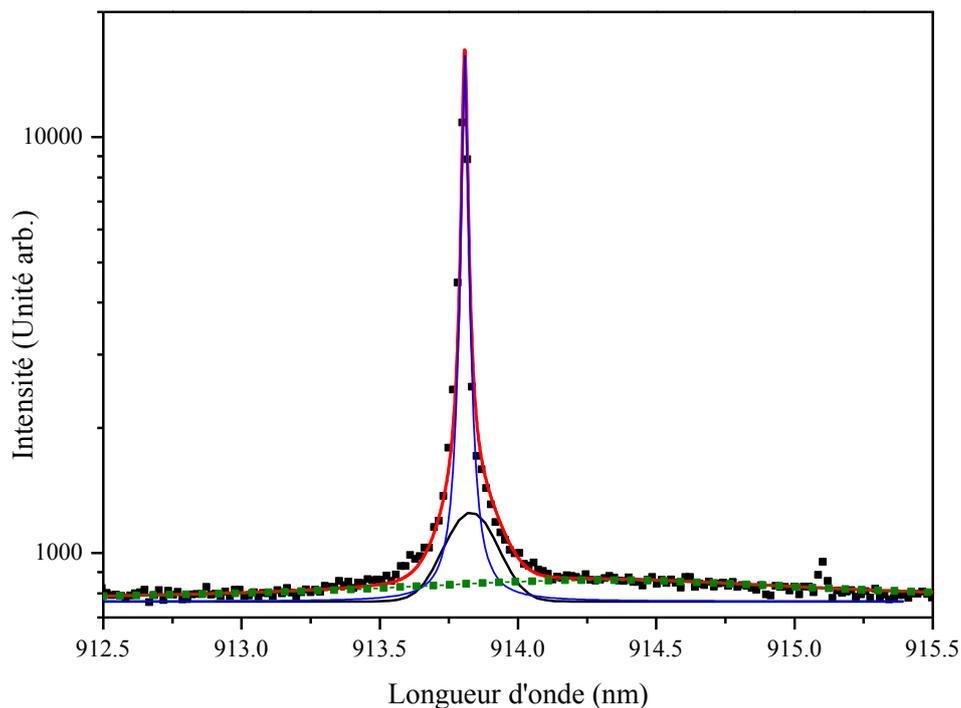


FIGURE 3.2 – Spectre typique d'émission d'une boîte excitée à la résonance ( $P=2 \mu W$ ) (boîte S3A). Le spectre (carré noirs) est représenté en échelle semi-logarithmique. Le trait continu en bleu représente la luminescence ajustée de la boîte, le trait continu en noir représente l'ajustement du laser d'excitation, et les carrés en vert représentent la luminescence assistée par phonons. Le trait plein en rouge représente la somme des trois contributions et ajuste parfaitement la courbe expérimentale.

(noir). A la puissance d'excitation (quelques  $\mu W$ ) permettant d'obtenir le maximum de signal, l'intensité collectée du laser diffusé est très faible, inférieure à 10% de l'intensité de luminescence. Notons qu'ici, la géométrie guidée permet à elle seule d'avoir une intensité du laser diffusé faible nécessaire à l'étude de la luminescence sous excitation résonante. Il reste enfin une émission spectralement large qui est identifiée à l'émission de photons assistée par phonons [78], généralement appelée "ailes-phonons". Les phonons qui contribuent à ces processus sont les phonons LA du matériau massif environnant, vu les énergie mises en jeu [112]. Ce processus sera détaillé dans la partie 3.3 . Dans notre cas, nous avons ajusté le profil par une fonction "pseudo-Voigt" (vert) (somme d'une lorentzienne et d'une gaussienne de même largeur) qui certes ne reproduit pas le profil réel de la densité spectrale des phonons [17, 113, 114] mais qui permet d'évaluer la largeur et l'intensité intégrée de cette luminescence. L'ajustement des données a donc été fait à partir de la formule suivante :

$$\begin{aligned}
I = & \underbrace{\frac{2A_{lum}}{\pi} \frac{\sigma_{lum}}{4(x - x_{lum})^2 + \sigma_{lum}^2}}_{I_{lum}} + \underbrace{\frac{A_{las}}{\sigma_{las}\sqrt{\pi/2}} e^{-2\frac{(x-x_{las})^2}{\sigma_{las}^2}}}_{I_{las}} \\
& + \underbrace{\mu \frac{2A_{ph}}{\pi} \frac{\sigma_{ph}}{4(x - x_{ph})^2 + \sigma_{ph}^2} + (1 - \mu) \frac{A_{ph}}{\sigma_{ph}\sqrt{\pi/2}} e^{-2\frac{(x-x_{ph})^2}{\sigma_{ph}^2}}}_{I_{phonons}}
\end{aligned} \tag{3.1}$$

où  $\sigma_i$  représente la largeur à mi-hauteur de chacune des contributions,  $A_i$  leur aire et  $x_i$  la longueur d'onde centrale des fonctions pour  $i = \{lum, las, ph\}$ .  $\mu$  représente la proportion de la fonction pseudo-Voigt qui est lorentzienne. A basse puissance d'excitation, l'intensité intégrée des ailes de phonons est du même ordre de grandeur que l'intensité intégrée de la raie centrale qu'on appelle raie "zéro-phonons". Pour les différentes boîtes que nous avons étudiées, nous mesurons des rapports proches de 70% entre les deux intensités. Cette contribution n'est observée qu'à la résonance pour deux raisons principales : la présence d'autres raies de luminescence, ainsi que l'apparition d'un fond continu dans les spectres de luminescence avec la puissance d'excitation font qu'il est très difficile d'identifier cette contribution.

La somme de ces trois contributions est représentée sur la figure 3.2 par le trait plein en rouge. L'ajustement est alors en très bon accord avec les données expérimentales.

### 3.1.2 Microphotoluminescence résolue en polarisation

Afin de connaître la nature des états, c'est-à-dire exciton neutre ou exciton chargé, nous étudions la luminescence résonante résolue en polarisation (diagramme polaire). Ces études se basent sur les travaux de C. Tonin décrits précisément dans sa thèse [21]. Dans le cas où l'on résoud la structure fine de l'exciton hors résonance (c'est-à-dire lorsque l'écart en énergie de la structure fine est supérieur à la résolution), les états sont facilement identifiables (figure 2.17 (b) et (c)). Cependant, lorsque la structure fine n'est pas résolue, l'étude de la luminescence résolue en polarisation à la résonance, permet d'identifier les états. En effet, le laser est suffisamment large spectralement ( $\sim 0,5$  meV) pour exciter les états de la structure fine d'un exciton neutre ( $< 200$   $\mu$ eV [21]). A partir de l'équation 1.16 vue au chapitre 1, l'intensité de l'émission en fonction de l'angle  $\alpha$  de l'analyseur s'écrit pour une excitation résonante [70] :

$$\begin{aligned}
I_r(\alpha) = & \left\{ (\cos \phi_X - R \sin \phi_Y) \cos \alpha \left[ \sqrt{1 - \beta^2} (\cos \theta \sin \phi_X + \sin \theta \cos \phi_Y) \right. \right. \\
& \left. \left. - \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\cos(2\psi - \theta) \sin \phi_X - \sin(2\psi - \theta) \cos \phi_X) \right] \right. \\
& \left. + (\sin \phi_X + R \cos \phi_Y) \sin \alpha \left[ \sqrt{1 - \beta^2} (\cos \theta \cos \phi_Y - \sin \theta \sin \phi_X) \right. \right. \\
& \left. \left. - \frac{\beta}{\sqrt{3}} (\sin(2\psi - \theta) \sin \phi_X - \cos(2\psi - \theta) \cos \phi_X) \right] \right\}^2
\end{aligned} \tag{3.2}$$

où  $\beta$ ,  $\psi$ ,  $\theta$ ,  $\phi_X$  et  $\phi_Y$  sont tels que définis au premier chapitre (section 1.3.4),  $R$  est le rapport des forces d'oscillateur des deux états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  et dépend des angles  $\phi_X$  et  $\phi_Y$ . Au contraire, dans le cas d'un exciton chargé, les états émettent avec une polarisation circulaire ou elliptique, ceci même à la résonance. L'étude du diagramme polaire d'émission à la résonance donne donc des informations supplémentaires pour l'identification des états observés. La figure 3.3 représente deux diagrammes polaires typiques issus de deux boîtes quantiques, pour un exciton neutre dont le splitting de structure fine n'est pas résolu hors résonance (a) et un exciton chargé (b). Dans le cas de l'exciton neutre, pour une excitation non-résonante, le diagramme est circulaire alors que la polarisation à la résonance est linéaire.

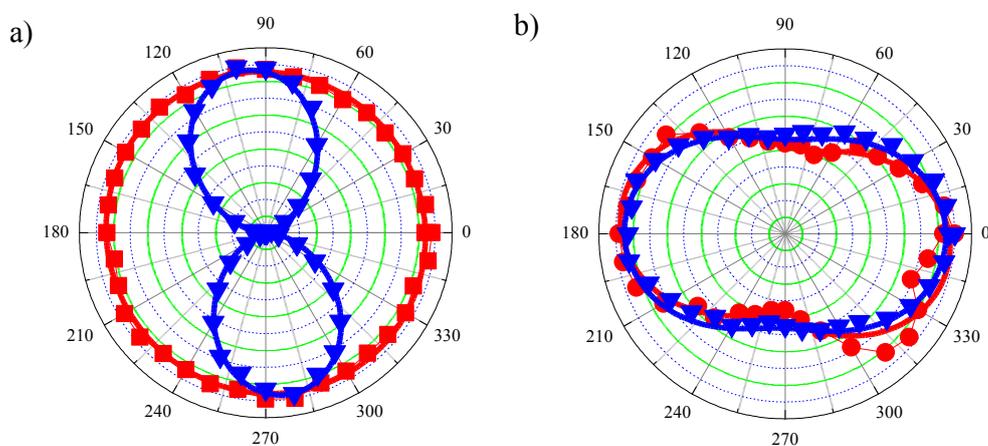


FIGURE 3.3 – Diagrammes polaires de la luminescence de l'exciton neutre de la boîte S3A (a) et de la transition de l'exciton chargé de la boîte S2A (b). En rouge, l'ajustement des diagrammes polaires non résonants (points rouges) en utilisant l'expression 1.17 et en bleu, l'ajustement des diagrammes polaires résonants (points bleus) en utilisant l'expression 3.2 dans le cas de l'exciton neutre et l'expression 1.17 dans le cas de l'exciton chargé.

L'étude du diagramme polaire hors résonance permet de déterminer les paramètres  $\beta$ ,  $\psi$  et  $\theta$ . On peut alors à partir des spectres à la résonance déterminer le rapport des forces d'oscillateur  $R$ , en laissant comme seuls paramètres ajustables les angles  $\phi_X$  et  $\phi_Y$ , comme définis dans le chapitre 1.3.4. Pour l'exciton neutre de la boîte S3A (figure 3.3 (a)) on a trouvé  $\beta = 0,05$  (caractéristique d'un diagramme polaire non résonant total, ici en rouge, circulaire) et un rapport de force d'oscillateur de  $R = 3$ . Dans le cas de l'exciton chargé de la boîte S2A (figure 3.3 (b)), la polarisation reste elliptique que ce soit en excitation résonante ou non résonante. Les diagrammes sont alors ajustés par la même expression (1.17). C'est cette indication que nous renseigne sur la nature de l'état étudié (chargé ou neutre).

### 3.1.3 Émission de photons uniques à la résonance

Pour confirmer que la structure de nos échantillons, lorsque l'on excite les boîtes quantiques à la résonance, permet l'émission de photons uniques (i.e. que le laser diffusé est tout à fait négligeable), il est nécessaire d'étudier la statistique d'émission de photons. La figure 3.4 montre le résultat d'une expérience de HBT réalisée sur la boîte S3A.

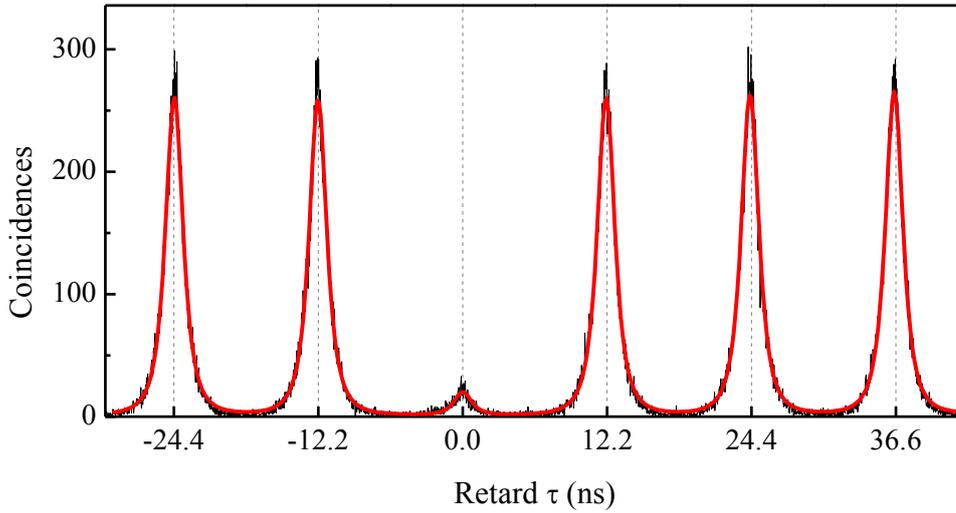


FIGURE 3.4 – Mesure de corrélation de photons sous excitation résonante, réalisée sans filtrage spectral ou en polarisation sur la boîte présentée S3A, à la même puissance d'excitation que pour le spectre figure 3.2. La valeur de  $g^{(2)}(0)$  mesurée est de 0,07, après une heure d'acquisition avec 100 000 coups/s par détecteur.

Pour réaliser cette expérience, la luminescence est couplée à une fibre optique et directement envoyée au dispositif de corrélation, contrairement au cas non-résonant où il est nécessaire de filtrer préalablement avec un spectromètre (voir chapitre 2, figure 2.17). Les données sont ajustées par une somme de gaussiennes, procédure décrite au chapitre précédent. A retard nul, on trouve  $g^{(2)}(0) = 0,07 \pm 0,01$ . L'ajustement présenté figure 3.4 n'est pas optimal pour le sommet des pics. Nous avons également ajusté les données à partir d'une somme d'exponentielles décroissantes et nous avons obtenu un ajustement dont les sommets étaient surestimés, mais dont la valeur de  $g^{(2)}(0) = 0,07 \pm 0,01$  est identique. La fonction d'ajustement idéale, c'est-à-dire la convolution entre une gaussienne (réponse des détecteurs) et une exponentielle décroissante (temps de vie du système à deux niveaux) pourrait permettre d'affiner l'ajustement. Les valeurs obtenues pour  $g^{(2)}(0)$  dans les deux cas précédents, nous indiquent cependant que cela n'apportera pas d'information supplémentaire pour caractériser l'unicité des photons émis.

Notons que le rapport de l'intensité intégrée de la luminescence totale (raie zéro phonons + laser + ailes phonons) et du laser diffusé (fig. 3.2), effectué à la même puissance d'excitation que la mesure du  $g^{(2)}$ , donne la même valeur de 0,07, compatible

avec le fond gaussien du laser. Ces corrélations à retard nul proviennent donc très probablement du laser diffusé, de très faible intensité par rapport à la luminescence. Nous pouvons en déduire que notre boîte sous excitation résonante est une source de photons uniques, et qu'il est possible de l'utiliser comme telle, même sans filtrage du laser.

### 3.1.4 Mesure du temps de cohérence

L'excitation résonante permet d'augmenter le temps de cohérence en éliminant les processus de déphasage qui interviennent lors d'une excitation à haute énergie. La figure 3.5 montre la différence entre le temps de cohérence sous excitation dans la couche de mouillage et sous excitation résonante pour deux boîtes, S2A et S3A. On voit que le temps de cohérence augmente de manière significative, passant de 450 ps à 1100 ps pour la première boîte et de 220 ps à 950 ps pour la seconde. L'augmentation du temps de cohérence pour ces deux boîtes est caractéristique de l'excitation résonante et a été observée pour toutes les boîtes étudiées. Cependant, les deux boîtes présentées ici restent des exceptions, dans la mesure où les temps de cohérence en excitation résonante sont ici comparables à la limite radiative  $T_2 = 2T_1$ , ce qui n'est pas le cas pour les autres boîtes observées. En général, le temps de cohérence est bien inférieur à cette limite, et met en évidence la présence d'autres de processus de déphasage. Les principaux mécanismes mis en évidence sont le couplage aux phonons acoustiques [17, 78] et la présence d'un champ électrostatique fluctuant [104, 115, 116, 117, 118].

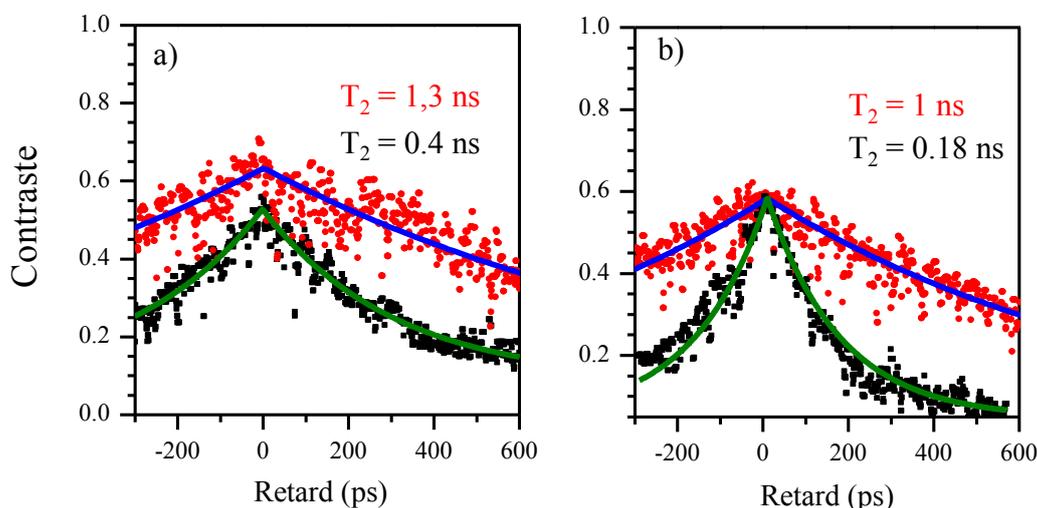


FIGURE 3.5 – Mesure du temps de cohérence par spectroscopie à transformée de Fourier. En noir, les données sous excitation non-résonante et en rouge, les données sous excitation résonante pour (a) la boîte S2A et (b) la boîte S3A. Les ajustements correspondants sont les courbes vertes (excitation non-résonante) et bleues (excitation résonante)

## 3.2 Interaction lumière-matière : approche semi-classique

Nous venons de démontrer que la géométrie guidée est bien adaptée pour l'étude de la luminescence résonante de boîte quantique, conduisant à l'émission de photons uniques avec un temps de cohérence bien supérieur ( $T_2^{NR}/T_2^R = 2$  à 4 pour les boîtes S2A et S3A) par rapport à l'excitation non résonante. La géométrie unidimensionnelle augmente par ailleurs l'interaction lumière boîte et nous allons donc étudier dans cette partie cette interaction qui nous permet notamment d'appréhender les mécanismes de décohérence liés à l'environnement.

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'interaction d'un système à deux niveaux avec un champ électromagnétique classique. Le champ est résonant avec la transition entre les deux niveaux, dont nous étudions l'évolution des populations. Nous définirons d'abord le couplage entre le champ et le système à deux niveaux. Nous verrons ensuite que dans le formalisme de la matrice densité, nous pouvons écrire les équations de Bloch qui régissent l'évolution temporelle du système à deux niveaux. Pour rendre compte complètement des observations expérimentales, notamment à cause des mécanismes de décohérence, il est nécessaire d'améliorer le modèle et d'introduire le couplage aux phonons et au guide d'onde dans les équations d'évolution du système.

Dans cette partie, les résultats expérimentaux sont obtenus sur l'échantillon S1. En effet, la présence de la cavité dans les échantillons S2 et S3 modifie les oscillations de Rabi et nous analyserons ce cas dans les parties 3.5 et 3.6.

### 3.2.1 Description de l'interaction

Nous considérons ici une boîte quantique idéale. Seuls deux états sont accessibles, l'état fondamental  $|0\rangle$  et l'état excité  $|1\rangle$  séparé par une énergie  $\hbar\omega_0$ . Nous considérons pour l'instant que la boîte n'est pas couplée à son environnement et en particulier au champ électromagnétique du vide, c'est à dire, nous négligeons l'émission spontanée. Le laser d'excitation peut être défini classiquement :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_L(\vec{r}, t) \cos(\omega_L t + \vec{k}\vec{r}) \quad (3.3)$$

où  $\omega_L$  et  $\vec{k} = \vec{u}2\pi/\lambda$  sont respectivement la pulsation et le vecteur d'onde du laser.  $\vec{E}_L$  est le profil spatio-temporel de l'onde incidente polarisée. Nous allons considérer que le champ est une onde plane, car le mode électromagnétique du guide dans lequel se trouve la boîte a des dimensions plus bien grandes que celle-ci. Nous avons donc  $\vec{E}_L(\vec{r}, t) = \vec{E}_L(t)$ .

### Hamiltonien d'interaction

Nous nous intéressons à l'interaction entre ce champ et un électron, de masse  $m$  et de charge  $q$ . Le hamiltonien du système peut s'écrire à partir du potentiel-vecteur  $\vec{A}$  [28] :

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} \left( \hat{p} - q \widehat{\vec{A}}(\hat{r}, t) \right)^2 + \widehat{V}_{coul}(\hat{r}) \quad (3.4)$$

où  $\hat{p} = -i\hbar \vec{\nabla}$  est l'opérateur impulsion et  $\hat{r}$  est l'opérateur position. De plus, les dimensions du système étudié sont très petites devant la longueur d'onde du champ incident. Nous nous plaçons donc dans l'approximation des grandes longueurs d'onde et considérons  $\vec{A}(\vec{r}, t)$  constant à l'échelle de la boîte, située en  $\vec{r}_0$ . Enfin, nous nous plaçons dans la jauge de Coulomb, telle que  $\nabla \cdot \vec{A} = 0$ . Le hamiltonien (3.4) devient :

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{int}$$

avec

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{p}^2}{2m} + \widehat{V}_{coul}(\vec{r}_0), \text{ et} \quad (3.5)$$

$$\hat{H}_{int} = -\frac{q}{m} \hat{p} \cdot \vec{A}(\vec{r}_0, t) + \frac{q^2 \vec{A}^2(\vec{r}_0, t)}{2m} \quad (3.6)$$

Le second terme de  $\hat{H}_{int}$  est ici un scalaire ayant pour effet de translater l'énergie. On ne le prendra plus en compte par la suite car on ne considère que les termes linéaires correspondant à l'absorption-émission d'un photon. En introduisant l'opérateur moment dipolaire :

$$\hat{\mu} = q(\hat{r} - \vec{r}_0)$$

On obtient le hamiltonien "dipolaire électrique" qui (3.6) s'écrit :

$$\hat{H}_{int} = -\hat{\mu} \cdot \vec{E}(\vec{r}_0, t) \quad (3.7)$$

### Hamiltonien d'un système à deux niveaux

Pour un système à deux niveaux tel que nous l'avons défini, le hamiltonien libre s'écrit :

$$\hat{H}_0 = E_0|0\rangle\langle 0| + E_1|1\rangle\langle 1| = \begin{pmatrix} E_0 & 0 \\ 0 & E_1 \end{pmatrix}$$

En prenant  $E_0$  comme origine des énergies, et avec  $E_1 - E_0 = \hbar\omega_0$ , on obtient :

$$H_0 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_0 \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Le hamiltonien d'interaction défini par l'équation 3.7 dépend de l'opérateur  $\hat{r}$  qui est impair. Ces composantes diagonales sont donc nulles :

$$\langle 0|\hat{\mu}|0\rangle = \langle 1|\hat{\mu}|1\rangle = 0$$

et nous pouvons définir ses éléments non-diagonaux tels que :

$$\langle 0|\widehat{\mu}|1\rangle = \mu_{01} \text{ et } \langle 1|\widehat{\mu}|0\rangle = \mu_{10}$$

Ces deux termes sont complexes conjugués. La fonction d'onde d'étude étant définie à une phase près (ex :  $e^{i\phi}|1\rangle$  avec  $\phi = -\arg(\mu_{01})$ ), nous pouvons rendre ces termes égaux et positifs de telle sorte que  $\mu_{01} = \mu_{10} = \mu$ . Ainsi, le hamiltonien d'interaction peut s'écrire :

$$\widehat{H}_{int} = \hbar\Omega_R \cos(\omega_L t) \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

où  $\Omega_R$  est la pulsation de Rabi, définie par :

$$\Omega_R = \frac{\mu E_L}{\hbar}$$

### 3.2.2 Équations de Bloch en régime continu : Oscillations de Rabi

Le hamiltonien que nous venons de définir ne décrit pas les interactions entre le système à deux niveaux et son environnement. Afin de prendre en compte ces couplages, responsables de l'émission spontanée et des processus de déphasage, nous utilisons le formalisme de la matrice densité. Dans ce formalisme, il n'est pas nécessaire de connaître exactement les processus d'interaction avec notre système, mais il suffit d'en connaître les temps caractéristiques pour modéliser l'évolution du système.

#### Formalisme de la matrice densité

L'opérateur densité  $\widehat{\rho}$ , dans le cas du système à deux niveaux que nous considérons, s'écrit :

$$\widehat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{00} & \rho_{01} \\ \rho_{10} & \rho_{11} \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

où les termes diagonaux  $\rho_{ii}$  représentent la probabilité de trouver le système dans l'état  $|i\rangle$ ,  $i = \{0, 1\}$  et sont appelés termes de population. Les termes non-diagonaux sont appelés termes de cohérence car ils prennent en compte la phase relative entre les composantes des deux états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . L'évolution de la matrice densité au cours du temps est régie par l'équation de Liouville - Von Neumann [119] :

$$i\hbar \frac{d}{dt} \rho(t) = [\widehat{H}, \rho(t)] \quad (3.11)$$

Afin de tenir compte des interactions entre le système et son environnement, il convient d'ajouter au second membre de l'équation de Liouville un terme de relaxation dont la matrice associée s'écrit :

$$\left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{rel} = \begin{pmatrix} -\frac{\rho_{00}(t)}{T_1} & -\frac{\rho_{01}(t)}{T_2} \\ -\frac{\rho_{10}(t)}{T_2} & -\frac{\rho_{11}(t)}{T_1} \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

où  $T_1$  est le temps de vie radiatif et  $T_2$  est le temps de cohérence, caractéristiques du système à deux niveaux. Dans le cas où seule l'émission spontanée est prise en compte, alors  $T_2 = 2T_1$ .

L'équation d'évolution prend la forme :

$$\frac{d}{dt} \rho(t) = -\frac{i}{\hbar} [\widehat{H}, \rho(t)] + \left\{ \frac{d}{dt} \rho(t) \right\}_{rel} \quad (3.13)$$

### Équations de Bloch en régime continu

En notant  $\dot{\rho} = \frac{d}{dt} \rho(t)$ , les équations de Bloch se déduisent de (3.13) et s'écrivent :

$$\begin{cases} \dot{\rho}_{11}(t) = -i\Omega_R \cos(\omega_L t) (\rho_{10}(t) - \rho_{01}(t)) - \frac{\rho_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\rho}_{00}(t) = -\dot{\rho}_{11}(t) \\ \dot{\rho}_{01}(t) = i\omega_0 \rho_{01}(t) + i\Omega_R \cos(\omega_L t) (\rho_{11}(t) - \rho_{00}(t)) - \frac{\rho_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\rho}_{10}(t) = -i\omega_0 \rho_{10}(t) - i\Omega_R \cos(\omega_L t) (\rho_{11}(t) - \rho_{00}(t)) - \frac{\rho_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.14)$$

L'évolution temporelle décrite par ces équations prend en compte des processus qui ne conservent pas l'énergie, et que nous pouvons négliger [28]. Il s'agit du passage de l'état  $|1\rangle$  à l'état  $|0\rangle$  avec absorption de photon, et le processus inverse, de l'état  $|0\rangle$  à  $|1\rangle$  avec émission de photon. Il est alors utile de se placer dans l'approximation du champ tournant [28] et de faire le changement de variable suivant :

$$\begin{cases} \sigma_{11} = \rho_{11} \\ \sigma_{00} = \rho_{00} \\ \sigma_{01} = \rho_{01} e^{-i\omega_L t} \\ \sigma_{10} = \rho_{10} e^{i\omega_L t} \end{cases} \quad (3.15)$$

Ainsi, les équations de Bloch sur les cohérences deviennent :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{01}(t) = i(\omega_0 - \omega_L) \sigma_{01}(t) + i\Omega_R \frac{1 + e^{-2i\omega_L t}}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = -i(\omega_0 - \omega_L) \sigma_{10}(t) - i\Omega_R \frac{1 + e^{2i\omega_L t}}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.16)$$

où nous allons négliger les termes en  $e^{\pm 2i\omega_L t}$  correspondant aux processus non-résonants qui ne conservent pas l'énergie. Les équations de Bloch s'écrivent finalement :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = -i\delta_L\sigma_{01}(t) + i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{01}(t)}{T_2} \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = i\delta_L\sigma_{10}(t) - i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\sigma_{10}(t)}{T_2} \end{cases} \quad (3.17)$$

où  $\delta_L = \omega_L - \omega_0$  est l'écart en énergie entre le laser et la transition du système à deux niveaux.

Ces équations peuvent être résolues analytiquement [20]. Pour  $\delta_L = 0$ , la population de l'état excité vaut :

$$\sigma_{11}(t) = \left(w_S + \frac{1}{2}\right) \left(1 - \left(\cos(\Omega t) + \frac{\gamma}{\Omega} \sin(\Omega t)\right)\right) e^{-\gamma t} \quad (3.18)$$

où  $\gamma = \frac{1}{2} \left(\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right)$  représente le temps caractéristique de relaxation de la population  $\sigma_{11}$ . Le facteur  $2w_S = -\frac{1}{1+\Omega_R^2 T_1 T_2}$  représente la différence de population en régime stationnaire,  $w_S = \left(\frac{\sigma_{11}-\sigma_{00}}{2}\right)_{stat}$ . La pulsation des oscillations est différente de celles intervenant dans les équations de Bloch et est donnée par :

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

En se plaçant dans le régime dit de couplage fort où  $\Omega_R \gg \gamma$ , on atteint le régime des oscillations de Rabi, où la population de l'état excité  $|1\rangle$  oscille entre 0 et 1, et  $w_S \approx 0$ . Ces oscillations s'amortissent sur un temps caractéristique  $1/\gamma$  et la population tend vers  $\sigma_{11,stat} = w_S + 1/2 \approx 1/2$ . (voir figure 3.6, où  $T_2 = T_1$  ce qui constitue une situation intermédiaire pour les différentes boîtes étudiées).

### 3.2.3 Équations de Bloch en régime impulsif

#### Cas des impulsions carrées

Les équations précédentes ont été obtenues pour une excitation continue. Les expériences que nous réalisons sont en régime impulsif, où la durée de l'interaction  $\tau$  correspondant à la durée de l'impulsion est très petite devant les temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$ . Dans le cas où les impulsions ont un profil temporel "carré", c'est-à-dire que le champ électrique d'excitation  $\vec{E}_L$  est constant durant l'impulsion, les équations de Bloch peuvent être résolues analytiquement, et l'état du système après le passage de l'impulsion est défini par l'aire de l'impulsion  $\theta_L$  :

$$\theta_L = \int_0^\tau \Omega_R(t) dt = \frac{\mu \cdot E_L}{\hbar} \tau \quad (3.19)$$

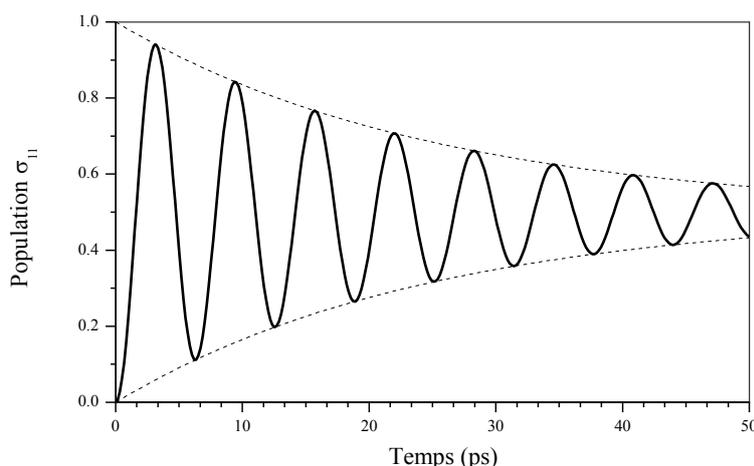


FIGURE 3.6 – Population du niveau excité en fonction du temps pour une excitation résonante, avec  $T_1 = T_2 = 100$  ps, et  $\Omega_R = 1$  rad.ps $^{-1}$  - soit  $\hbar\Omega_R \approx 0,66$  meV

On peut montrer qu'en régime impulsionnel, l'état final du système ne dépend pas de la forme de l'impulsion, mais uniquement de son aire [120]. On trouve alors, après le passage de l'impulsion de durée  $\tau$  :

$$\sigma_{11}(\tau) = \sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right) \quad (3.20)$$

et le système à deux niveaux se trouve dans l'état :

$$|\Psi(\tau)\rangle = \cos\left(\frac{\theta_L}{2}\right) |0\rangle + i \sin\left(\frac{\theta_L}{2}\right) |1\rangle \quad (3.21)$$

Cette superposition cohérente des états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$  constitue un qubit que l'on peut ainsi définir dans une boîte quantique et que l'on peut entièrement contrôler par un paramètre  $\theta_L$ , lié aux impulsions du laser d'excitation.

Nous voyons que nous pouvons définir des valeurs particulières d'aire d'impulsion. En partant de l'état fondamental  $|\Psi(0)\rangle = |0\rangle$  :

- si  $\theta_L = \pi/2$ , les deux états sont dans une superposition cohérente, dit de cohérence maximale :

$$|\Psi(\tau)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|0\rangle + i|1\rangle)$$

- si  $\theta_L = \pi$ , le système à deux niveaux se trouve dans son état excité, avec une probabilité de 1 :

$$|\Psi(\tau)\rangle = i|1\rangle$$

- si  $\theta_L = 2\pi$ , le système retourne dans son état initial :

$$|\Psi(\tau)\rangle = |0\rangle$$

### Cas des impulsions sécantes hyperboliques

Pour des impulsions très courtes comme les impulsions picosecondes que nous utilisons, l'approximation d'impulsions carrées n'est pas réaliste. L'amplitude du champ  $\vec{E}_L(t)$  varie pendant le temps d'interaction. En général, ces impulsions sont modélisées par une fonction sécante hyperbolique [121], d'amplitude  $E_L$  et de largeur à mi-hauteur  $\tau$  :

$$E_L(t) = E_L \operatorname{sech}\left(\frac{t}{\tau}\right) \quad (3.22)$$

L'état du système à l'instant  $t$  dépend maintenant de la valeur de  $\theta(t)$  :

$$\begin{aligned} \theta(t) &= \frac{\mu \cdot E_L}{\hbar} \int_0^t \operatorname{sech}\left(\frac{t'}{\tau}\right) dt' \\ &= 2\tau \frac{\mu \cdot E_L}{\hbar} \left[ \arctan\left(\tanh\left(\frac{t}{2\tau}\right)\right) + \frac{\pi}{4} \right] \end{aligned} \quad (3.23)$$

L'aire totale de la sécante hyperbolique est  $\pi\tau$  et celle de l'impulsion est :

$$\theta_L = \theta(+\infty) = \frac{\mu \cdot E_L}{\hbar} \pi\tau \quad (3.24)$$

L'aire en fonction du temps peut se réécrire :

$$\theta(t) = \frac{2}{\pi} \theta_L \left[ \arctan\left(\tanh\left(\frac{t}{2\tau}\right)\right) + \frac{\pi}{4} \right] \quad (3.25)$$

Sur la figure 3.7 est représentée l'évolution de la population du niveau excité au cours du temps, pour des aires d'impulsion  $\theta_L = \pi/2, \pi, 2\pi$ , et  $11\pi$ . L'impulsion choisie est une sécante hyperbolique de largeur à mi-hauteur 5 ps. Nous voyons qu'au cours de l'impulsion, la période des oscillations de Rabi varie mais l'état final du système est entièrement défini par l'aire de l'impulsion modulo  $2\pi$ . Ainsi, une impulsion  $\pi$  et une impulsion  $11\pi$ , préparent le système dans le même état final, en l'occurrence l'état excité.

#### 3.2.4 Résultats expérimentaux : Oscillation de Rabi

L'oscillation de Rabi du système à deux niveaux a lieu pendant la durée de l'impulsion, soit quelques picosecondes. Il n'est alors pas possible de la résoudre temporellement avec les moyens expérimentaux dont on dispose. En effet, pour le proche infrarouge, la meilleure résolution temporelle que nous ayons est celle des APD, et vaut 300 ps.

A partir des spectres de luminescence résonante en fonction de la puissance d'excitation, on peut construire l'oscillation de Rabi. En effet, chaque point de l'oscillation de Rabi correspond à la population de l'état excité  $\sigma_{11}$  pour une impulsion d'aire  $\theta_L$ . Cette population relaxe vers l'état fondamental avec une constante de temps  $T_1$  en émettant un photon. Ainsi, en considérant l'impulsion comme infiniment brève,

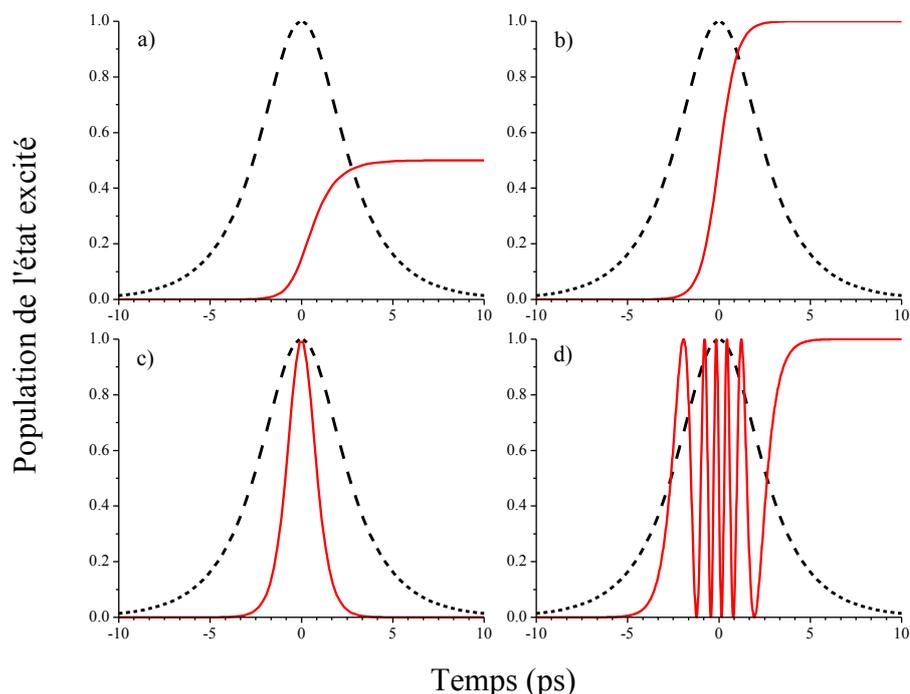


FIGURE 3.7 – Exemples d’oscillations de Rabi en régime impulsionnel, avec une impulsion de largeur 5 ps et d’aire (a)  $\theta_L = \pi/2$ , (b)  $\theta_L = \pi$ , (c)  $\theta_L = 2\pi$ , et (d)  $\theta_L = 11\pi$ . En rouge est représenté l’évolution de la population  $\sigma_{11}$  et en pointillé est représentée l’impulsion laser normalisée.

on peut écrire la population de l’état excité du système ainsi que la probabilité  $P_{lum}$  d’avoir émis un photon au cours du temps :

$$\begin{aligned}\sigma_{11}(t, \theta_L) &= \sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right)e^{-t/T_1} \\ P_{lum}(t, \theta_L) &= \sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right)(1 - e^{-t/T_1})\end{aligned}\quad (3.26)$$

Dans le cas où le taux de répétition du laser est bien plus grand que  $T_1$ , un photon sera émis entre chaque impulsion laser avec une probabilité :

$$P_{lum}(\theta_L) \approx \sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right)$$

Sur le détecteur, on peut mesurer l’intensité intégrée de la luminescence, qui s’écrit alors :

$$I_{lum} = C.P_{lum} = C.\sin^2\left(\frac{\theta_L}{2}\right)\quad (3.27)$$

où  $C$  est une constante de normalisation, qui dépend du taux de répétition du laser, du temps d’intégration, de l’efficacité du système de détection (spectromètre + CCD)

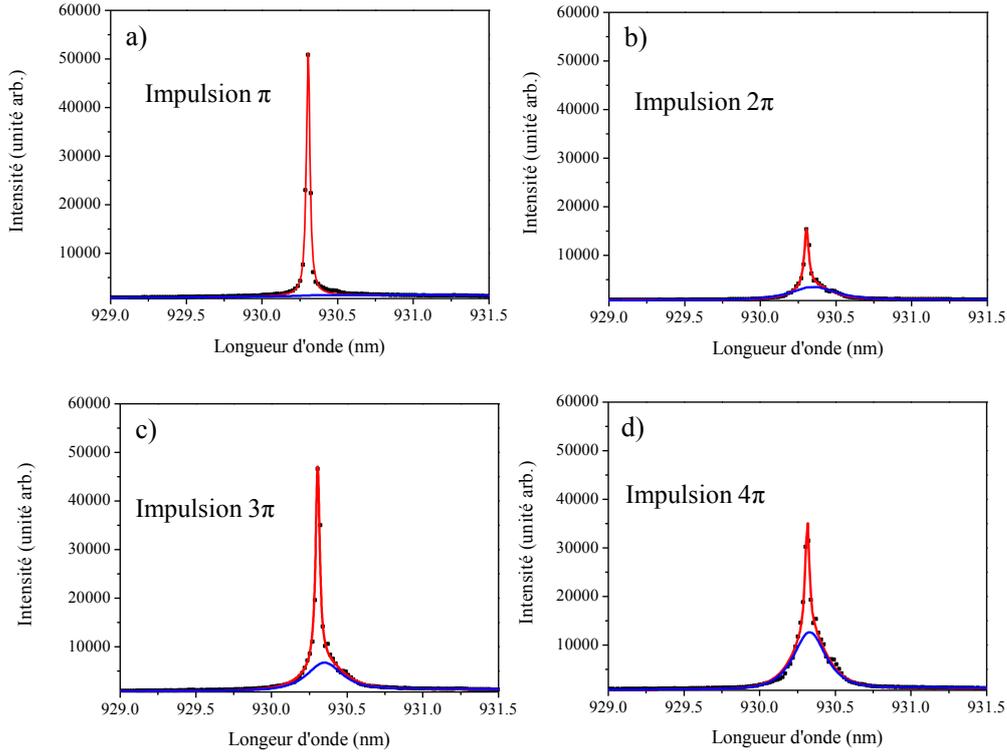


FIGURE 3.8 – Spectres de  $\mu$ -PL résonants de la boîte S1A pour différentes puissances d’excitation. Le laser est ajusté par une gaussienne en bleu et la luminescence est ajustée par une lorentzienne en rouge.

et de l’efficacité de collection de la luminescence. La variation de la population  $\sigma_{11}$  en fonction de l’aire de l’impulsion  $\theta_L$  se traduit donc par une oscillation de l’intensité de la luminescence détectée, reflétant le couplage non-linéaire à la lumière.

La figure 3.8 montre des spectres de photoluminescence typiques de la boîte S1A à quatre puissances d’excitation différentes, correspondant à des excitations  $\pi$ ,  $2\pi$ ,  $3\pi$  et  $4\pi$ . Pour chaque puissance, la lumière diffusée du laser est ajustée par une gaussienne en bleu. L’ajustement lorentzien en rouge correspond à la luminescence de la boîte. La figure 3.8 (a) montre un spectre pour une impulsion  $\pi$ , où le laser reste à faible intensité et la luminescence atteint son maximum. Pour une impulsion  $2\pi$  (figure 3.8 (b)), la luminescence atteint un minimum. Pour une impulsion  $3\pi$  (figure 3.8 (c)), la luminescence atteint son deuxième maximum, et pour une impulsion  $4\pi$ , son deuxième minimum. L’intensité de luminescence est tracée en fonction de la racine carrée de la puissance d’excitation, proportionnelle à l’aire de l’impulsion.

Nous obtenons plusieurs types d’oscillations de Rabi comme le montre la figure 3.9 sur trois boîtes différentes de l’échantillon S1. Les données sont ajustées en utilisant les équations de Bloch (3.17) dans lesquelles  $\Omega_R$  est proportionnel à l’aire de l’impul-

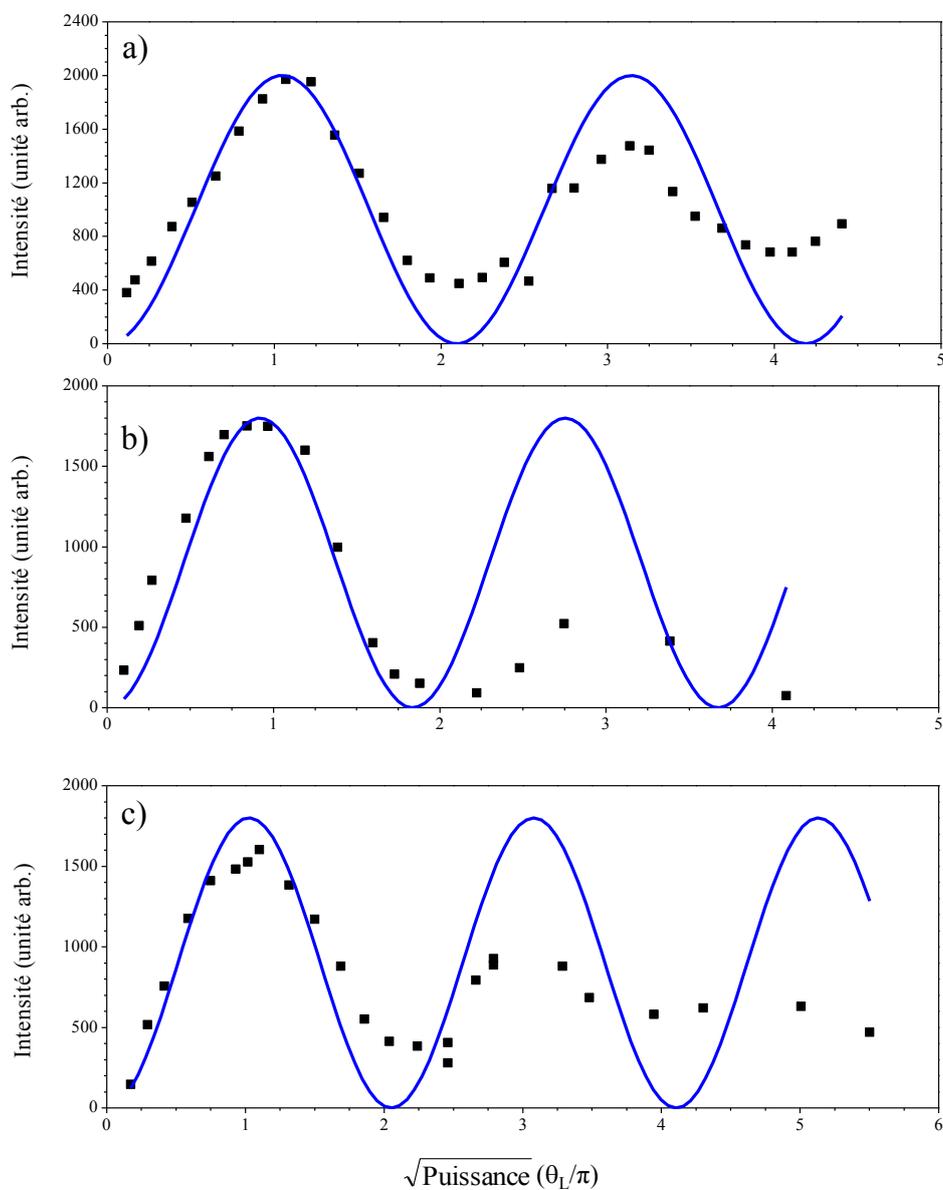


FIGURE 3.9 – Différents comportements des oscillations de Rabi : a) Boîte S1A, la valeur finale de l'intensité tend vers la moitié de l'intensité maximale. b) Boîte S1B, la valeur finale de l'intensité tend vers une valeur nulle à forte puissance d'excitation. c) Autre boîte de l'échantillon S1, la valeur finale de l'intensité tend vers une valeur intermédiaire. Les points correspondent aux mesures expérimentales, la courbe en trait plein en bleu correspond à une simulation de l'oscillation de Rabi par les équations de Bloch optiques (équations (3.17)) avec  $T_1$  et  $T_2$  constants correspondants aux valeurs mesurées à faible puissance d'excitation (impulsions  $\pi/2$ ).

sion.  $T_1$  et  $T_2$  sont pris constants et égaux aux valeurs mesurées respectivement par luminescence résolue en temps et FTIR pour des impulsions d'aire  $\pi/2$ . Deux comportements extrêmes sont observés. Dans le premier cas, figure 3.9 (a), l'amplitude de l'oscillation s'amortit plus rapidement que ce qui est prévu par les simulations, et après quelques périodes seulement, l'oscillation est totalement amortie et l'intensité est égale à la moitié de l'intensité maximale. La figure 3.9 (b) montre une oscillation dont l'amortissement tend vers une valeur nulle à forte puissance. En plus de ces deux situations, nous avons observé également des cas intermédiaires, où la population tend vers une limite non nulle mais inférieure à la valeur médiane (figure 3.9 (c)).

L'origine physique de l'amortissement des oscillations fera l'objet des deux parties qui suivent. Nous l'attribuons :

- au couplage aux phonons acoustiques, responsable de la perte de cohérence du système en fonction de la puissance d'excitation et,
- au couplage entre la boîte et le mode unidimensionnel guidé qui permet de comprendre l'amortissement des oscillations de Rabi vers une valeur inférieure à la valeur médiane.

### 3.3 Couplage aux phonons acoustiques

Le couplage des excitations électroniques aux phonons acoustiques dans les boîtes quantiques est un phénomène étudié depuis de nombreuses années par de nombreux groupes [17, 77, 78, 101, 122, 123, 124, 125, 126]. Il permet de comprendre l'amortissement des oscillations de Rabi et la perte de cohérence liée à l'excitation résonante. Dans cette partie, nous verrons d'abord comment les phonons acoustiques LA interagissent avec le système à deux niveaux et se manifestent au niveau des spectres. Puis, nous verrons que l'interaction des phonons et du système à deux niveaux est influencé par l'excitation résonante, causant l'amortissement des oscillations de Rabi. Pour cela, nous étudierons la luminescence résonante qui fait apparaître des processus d'émission et d'absorption de phonons dans les spectres.

#### 3.3.1 Modélisation du couplage

Une boîte quantique n'est pas un système à deux niveaux isolé. Les boîtes d'InAs/GaAs se trouvent dans une matrice cristalline de GaAs, dont les vibrations du réseau, ou phonons, vont constituer un canal possible de relaxation de l'énergie. Les études sur le couplage des phonons avec les excitons dans le matériau massif datent des années 60 [113]. Les premières expériences sur les boîtes quantiques semiconductrices montrant le couplage aux phonons longitudinaux acoustiques (LA) apparaissent dans les années 2000 [78]. Le hamiltonien modélisant ce couplage s'écrit [127] :

$$H = E_X |X\rangle\langle X| + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} \left( b_{\vec{q}}^\dagger b_{\vec{q}} + \frac{1}{2} \right) + \hbar |X\rangle\langle X| \sum_{\vec{q}} (g_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^\dagger + g_{\vec{q}}^* b_{\vec{q}}) \quad (3.28)$$

où  $|X\rangle$  est l'état excitonique, et  $b_{\vec{q}}^\dagger$  (resp. et  $b_{\vec{q}}$ ) est l'opérateur création (annihilation) du phonon de moment  $\vec{q}$  et d'énergie  $\hbar\omega_{\vec{q}}$ . Les deux premiers termes sont les contributions de l'exciton et des phonons à l'énergie du système. Le dernier terme caractérise l'interaction exciton-phonon avec la constante de couplage [126, 128] :

$$g_{\vec{q}} = \frac{q}{\sqrt{2\hbar\mu\omega_{\vec{q}}V}} (D_e \mathcal{P}[\Psi^e(\vec{r}')] - D_h \mathcal{P}[\Psi^h(\vec{r}')]]) \quad (3.29)$$

où  $\mu$  est la masse volumique du matériau,  $V$  son volume de maille élémentaire,  $D_e$  (respectivement  $D_h$ ) le potentiel de déformation dans le matériau massif de l'électron (resp. du trou) et  $\mathcal{P}[\Psi^e]$  (resp.  $\mathcal{P}[\Psi^h]$ ) le facteur de forme de la fonction d'onde des électrons (resp. des trous) qui dépend du confinement des porteurs. Les états propres sont des états habillés exciton-phonons, appelés polarons. L'état fondamental consiste alors en un bain de phonons, sans excitation électronique dans la boîte, et le niveau excité en une paire électron-trou couplée au bain de phonons. La figure 3.10 (à gauche) montre l'énergie du système représentée par un oscillateur harmonique en fonction du déplacement des atomes du réseau cristallin par rapport à leur position d'équilibre. Le couplage polaronique modifie la position d'équilibre du niveau excitonique [78], et les transitions optiques mettant en jeu l'émission ou l'absorption de phonons sont alors permises.

La force du couplage entre les niveaux électroniques et les phonons du matériau massif de GaAs est décrite par la fonction  $J(\omega)$  qu'on appelle densité spectrale de phonons [114] :

$$J(\omega) = \frac{1}{\hbar^2} \sum_{\vec{q}} |g_{\vec{q}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\vec{q}}) = \frac{(D_e \mathcal{P}[\Psi^e(\vec{r}')] - D_h \mathcal{P}[\Psi^h(\vec{r}')]]) \omega^3}{4\pi^2 \hbar \mu c_s^5} \quad (3.30)$$

où  $c_s$  est la vitesse du son dans le matériau. Les facteurs de forme des porteurs de charge induisent une fréquence de coupure  $\omega_c$  du bain de phonon interagissant avec la boîte [129]. Plus la taille du confinement diminue, et plus l'exciton se couple aux phonons de plus haute énergie et la force du couplage augmente [123, 130]. La densité spectrale de phonons peut alors s'écrire :

$$J(\omega) = C\omega^3 e^{-(\omega/\omega_c)^2} \quad (3.31)$$

où  $C$  est une constante liée aux différents paramètres du matériau massif de GaAs :

$$C = \frac{(D_e - D_h)^2}{4\pi\hbar^2\mu c_s^5} \quad (3.32)$$

La figure 3.10 (à droite) représente le système dans son état excité ainsi que la transition optique vers l'état fondamental qui est couplé à l'ensemble du bain de phonons avec une force  $J(\omega)$ , dont l'allure en fonction de  $\omega$  est représentée qualitativement. L'état excité n'est lui couplé qu'aux phonons existant dans le matériau à température finie. La population  $n_{\vec{q}}$  du mode de phonon  $\vec{q}$  est donnée par la distribution de Bose-Einstein :

$$n_{\vec{q}} = \frac{1}{e^{\hbar\omega_{\vec{q}}/k_B T} - 1} \quad (3.33)$$

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann. La force du couplage à ces phonons est donc donnée par  $n_{\vec{q}}J(\omega)$ . A l'aide de cette modélisation, il est possible d'analyser les spectres de la luminescence résonante d'une boîte quantique. On peut alors obtenir des informations sur le couplage avec les phonons LA.

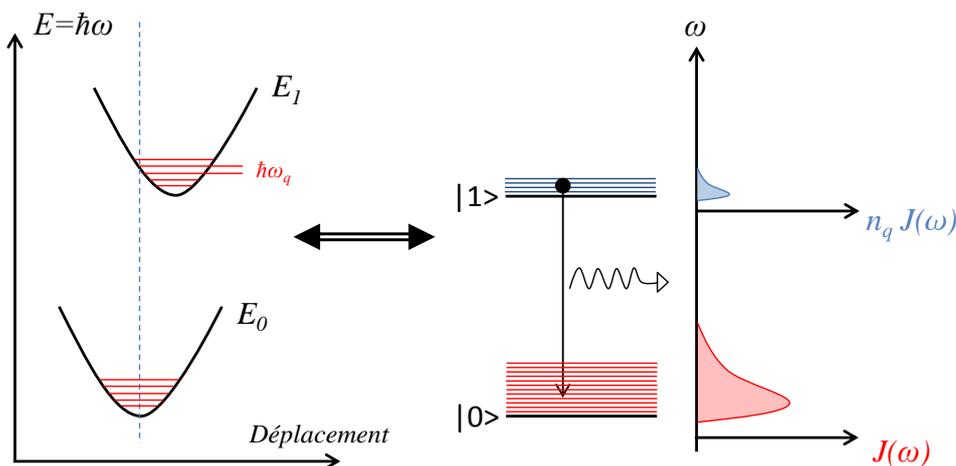


FIGURE 3.10 – Schéma de la recombinaison radiative assistée par phonons. A gauche, modélisation par un oscillateur harmonique du potentiel de déformation du matériau définissant l'énergie des phonons LA. A droite, représentation du couplage entre l'état excité du système à deux niveaux et les phonons.

Le spectre de luminescence (voir figure 3.11 (a)) résultant est constitué d'une raie zéro-phonon, qui n'est pas assistée par l'émission ou l'absorption d'un phonon. A plus haute énergie (basses longueurs d'onde), le spectre est constitué de la luminescence liée à l'absorption d'un (ou plusieurs) phonon(s) et donc à la population  $n_{\vec{q}}$ . A plus basse énergie, la luminescence observée est liée à l'émission d'un (ou plusieurs) phonon(s).

En augmentant la puissance d'excitation (pour  $\theta_L < \pi$ ), on augmente la population de l'état excité de la boîte quantique. La figure 3.11 (b) montre l'évolution de l'aire intégrée de la luminescence des ailes phonons en fonction de la luminescence zéro-phonon, directement proportionnelle à la population de la boîte. On remarque alors

qu'à faible puissance ( $\theta_L < \pi$ ), l'intensité des ailes-phonons  $I_{ph}$  est proportionnelle à celle de la luminescence zéro-phonon  $I_{lum}$  :

$$I_{ph} = \alpha \cdot I_{lum}$$

où  $\alpha$  est le facteur de proportionnalité et vaut ici 0,7. Ce qui est important c'est la variation linéaire entre  $I_{ph}$  et  $I_{lum}$ . En effet, la valeur numérique de  $\alpha$  en soi comporte une grande incertitude, difficile à évaluer, du fait que la résolution spectrale ne permette pas de déterminer précisément le rapport hauteur sur largeur de la raie zéro-phonon.

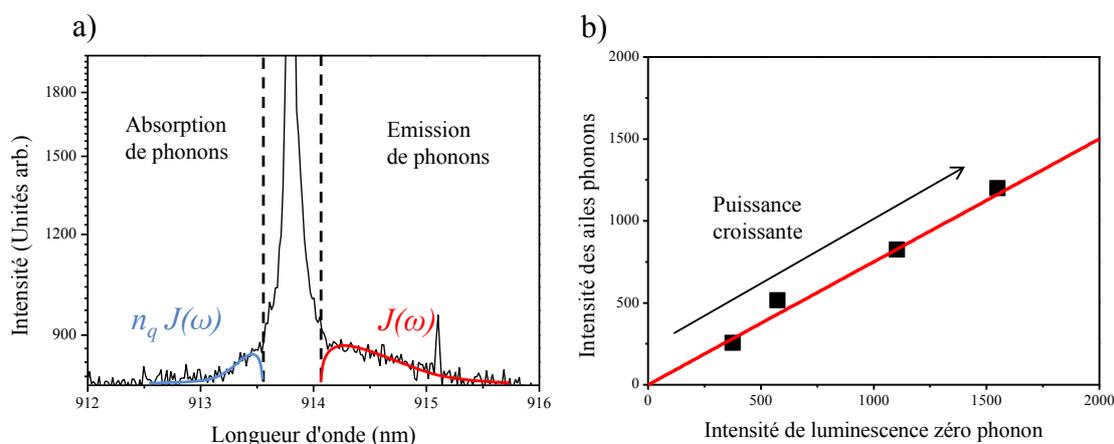


FIGURE 3.11 – a) Spectre de luminescence résonante montrant les différentes contributions des phonons à l'émission et à l'absorption. b) Evolution des ailes de phonons en fonction de la luminescence zéro phonon pour quatre puissances d'excitation telles que  $\theta_L < \pi$ .

### 3.3.2 Couplage résonant aux phonons en régime de couplage fort

A plus forte puissance d'excitation, lorsque l'on atteint le régime de Rabi, le couplage aux phonons n'est plus linéaire [124]. Dans le cadre d'un couplage fort entre le système à deux niveaux et le laser d'excitation, le système peut être décrit par le modèle de l'atome habillé composé de deux niveaux dont l'écart en énergie est  $\Omega_R$  [28]. Le système oscille de manière cohérente entre ces deux niveaux pendant l'interaction avec l'impulsion. Il se couple alors de manière résonante au bain de phonons, avec une force  $J(\Omega_R)$ , entraînant une perte de la cohérence du système à deux niveaux. Ce couplage résonant, dépendant de  $\Omega_R^2$ , a été étudié par plusieurs groupes [131, 126, 107, 122, 132] et identifié comme étant une source importante de déphasage à la résonance, notamment responsable de l'amortissement des oscillations de Rabi. Le schéma figure

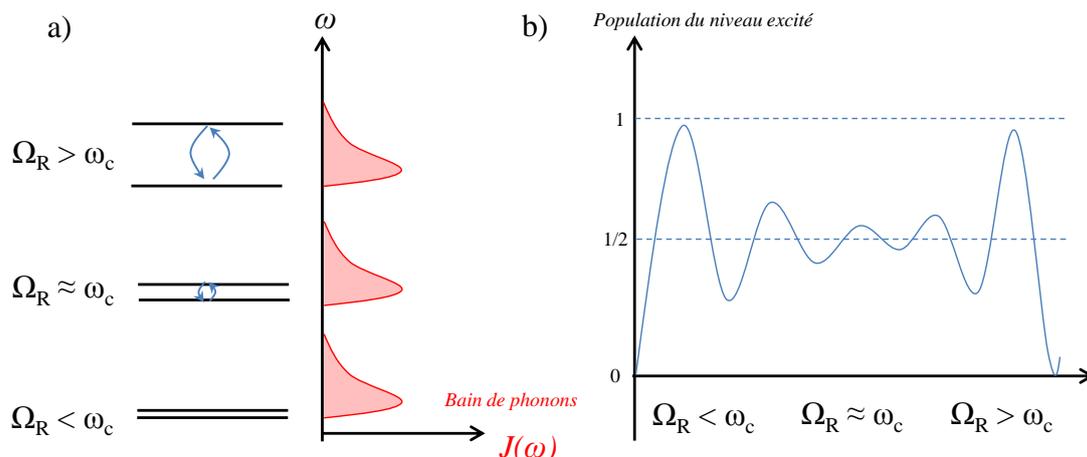


FIGURE 3.12 – a) Schéma du couplage résonant aux phonons pour trois puissances d'excitation. Les niveaux d'énergie à gauche représente l'état habillé exciton-photon pour les trois puissances considérées. L'état à basse énergie est l'état  $|0, N \text{ photons}\rangle$  et l'état à haute énergie est l'état  $|1, N - 1 \text{ photons}\rangle$ . L'écart entre les deux niveaux est donné par  $\hbar\Omega_R$ . b) Oscillation de Rabi attendue par ce modèle, où l'amortissement dépend de la puissance d'excitation.

3.12 (a) illustre ce couplage résonant. D'un point de vue qualitatif, on distingue deux régimes de puissance, correspondant à des régimes de couplages différent :

- **A faible puissance** ( $\Omega_R \ll \omega_c$ ) : Le couplage exciton-phonon peut être décrit par un couplage faible [126]. La force du couplage augmente avec la puissance d'excitation, conduisant à une perte de cohérence pendant la durée de l'interaction, et l'oscillation de Rabi observée est alors amortie.
- **A forte puissance d'excitation** ( $\Omega_R \gg \omega_c$ ) : l'écart entre les niveaux devient plus grand que la densité spectrale des phonons. Lorsque la puissance d'excitation augmente, le couplage résonant aux phonons diminue. On s'attend théoriquement à retrouver des oscillations de Rabi non amorties [124].

Dans notre situation,  $\omega_c$  est de l'ordre de  $5 \text{ ps}^{-1}$  et  $\Omega_R$  pour une impulsion  $\pi$  de  $2 \text{ ps}$  est de l'ordre de  $0,5 \text{ ps}^{-1}$ . Ainsi, nous sommes toujours dans le régime où  $\Omega_R \ll \omega_c$ . Notons que le régime à forte puissance n'a encore jamais été observé par les différents groupes étudiant les oscillations de Rabi dans les boîtes quantiques, car les puissances à atteindre sont relativement élevées. Dans notre cas, nous aurions beaucoup trop de laser diffusé pour pouvoir résoudre l'oscillation de Rabi. Très récemment, un groupe a observé des oscillations de Rabi amorties jusqu'à  $10\pi$ , sans voir apparaître ce régime [133].

Pendant l'oscillation de Rabi, il est également possible d'avoir de la luminescence assistée par absorption ou émission de phonons. L'intensité de ce processus, mesurée sur

la boîte S2A par l'intermédiaire de l'intensité intégrée des ailes-phonons, est représenté sur la figure 3.13 (a) (points rouges) en fonction de la puissance d'excitation, ainsi que l'intensité de la luminescence zéro-phonon (carrés noirs), proportionnelle à la population de l'état excité. On remarque que l'intensité des ailes phonons suit l'intensité de la raie zéro-phonon aux faibles puissances, comme nous l'avons vu précédemment. A plus forte puissance en revanche, l'intensité des ailes-phonons augmente plus rapidement que celle de la raie zéro-phonon. Sur le même principe que pour la figure 3.11 (b), on trace l'intensité intégrée des ailes-phonons en fonction de l'intensité de la raie zéro-phonon (figure 3.13 (b)). On retrouve le régime linéaire, mais on met aussi en évidence l'écart à ce régime à forte puissance. Pour interpréter cet écart, on peut considérer que les ailes-phonons viennent de deux contributions :

- Une contribution linéaire, correspondant à l'émission de photons assistée par phonons et proportionnelle à l'émission de la raie zéro-phonon.
- L'émission de phonons due au couplage résonant avec l'état habillé exciton-photons.

On peut alors écrire :

$$I_{ph} = \alpha I_{lum} + I_{ph,res} \quad (3.34)$$

où  $I_{ph,res}$  est la contribution aux ailes de phonons dû au couplage résonant entre l'oscillation de l'état habillé exciton-photons et le bain de phonon. Sur la figure 3.14, l'intensité  $I_{ph,res}$  est tracée en fonction de la puissance du laser d'excitation. Cette intensité suit une loi linéaire, et on peut écrire :

$$I_{ph,res} = KP \propto K\Omega_R^2 \quad (3.35)$$

où  $K$  est une constante de proportionnalité caractérisant le couplage aux phonons et  $P$  est la puissance d'excitation, proportionnelle à la pulsation de Rabi  $\Omega_R^2$ . Le fait que l'intensité de la luminescence intégrée des ailes-phonons varie à forte puissance d'excitation comme le carré de la pulsation de Rabi montre que le couplage aux phonons est un effet induit par l'excitation et à l'origine de l'amortissement des oscillations de Rabi.

Afin de modéliser les oscillations de Rabi en présence du couplage aux phonons LA, nous introduisons dans l'équation 3.28, le couplage supplémentaire aux photons. Ainsi, le hamiltonien prend la forme [126] :

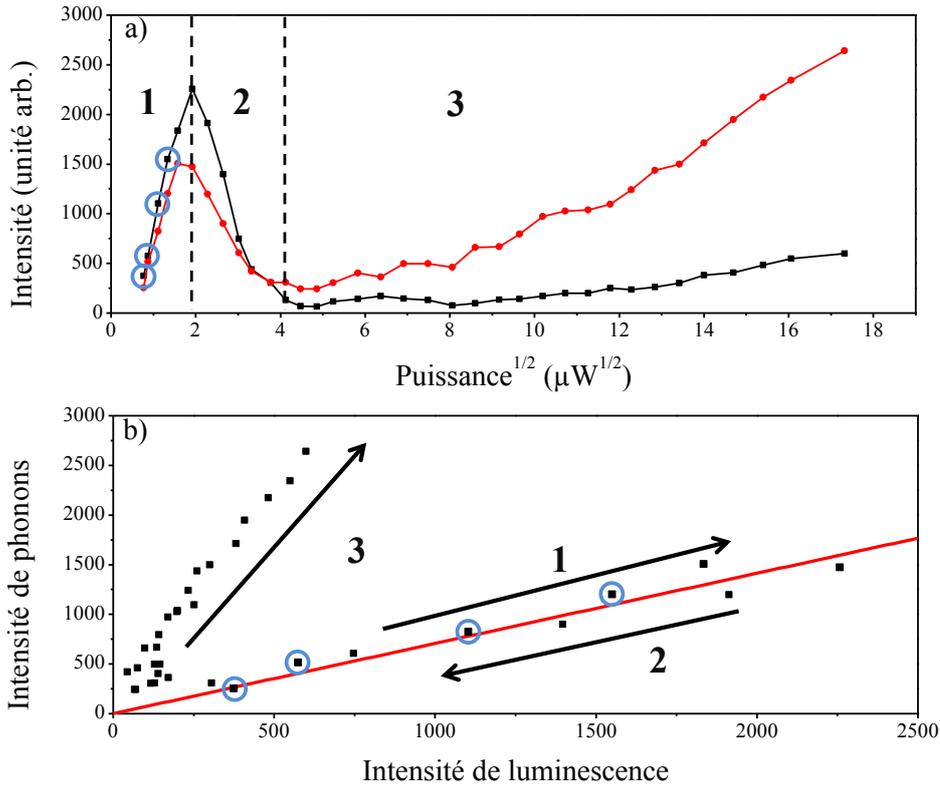


FIGURE 3.13 – Évolution de l'intensité de luminescence assistée par phonons. a) Aire intégrée du signal de luminescence de la raie zéro-phonon, proportionnelle à la population de l'état excité de la boîte (oscillation de Rabi, en noir) et du signal de luminescence intégré des ailes phonons (en rouge) en fonction de la puissance du laser d'excitation. b) Intensité intégrée de la luminescence des ailes-phonons en fonction de l'intensité de luminescence zéro-phonon. Les points entourés en bleu indiquent les quatre points déjà vu figure 3.11. Les flèches indiquent le sens croissant de la puissance d'excitation. La première oscillation (zones 1 et 2) est ajustée par une fonction linéaire (rouge) comme décrit dans la figure 3.11.

$$\begin{aligned}
 H = E_X |X\rangle\langle X| + \frac{\hbar\Omega(t)}{2} (|0\rangle\langle X| + |X\rangle\langle 0|) + \sum_{\vec{q}} \hbar\omega_{\vec{q}} \left( b_{\vec{q}}^\dagger b_{\vec{q}} + \frac{1}{2} \right) \\
 + \hbar |X\rangle\langle X| \sum_{\vec{q}} (g_{\vec{q}} b_{\vec{q}}^\dagger + g_{\vec{q}}^* b_{\vec{q}})
 \end{aligned} \tag{3.36}$$

Il a été montré que dans le régime à faible puissance dans lequel nous travaillons ( $\Omega_R < \omega_c$ ), une approche perturbative du couplage exciton-phonon est suffisante pour décrire la perte de cohérence du système [126, 129]. En utilisant le formalisme de la matrice densité, le terme de cohérence de l'équation (3.17) s'écrit [126] :

$$\dot{\sigma}_{01}(t) = i \frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \coth \left( \frac{\hbar\Omega}{2k_B T} \right) \sigma_{01}(t) \tag{3.37}$$

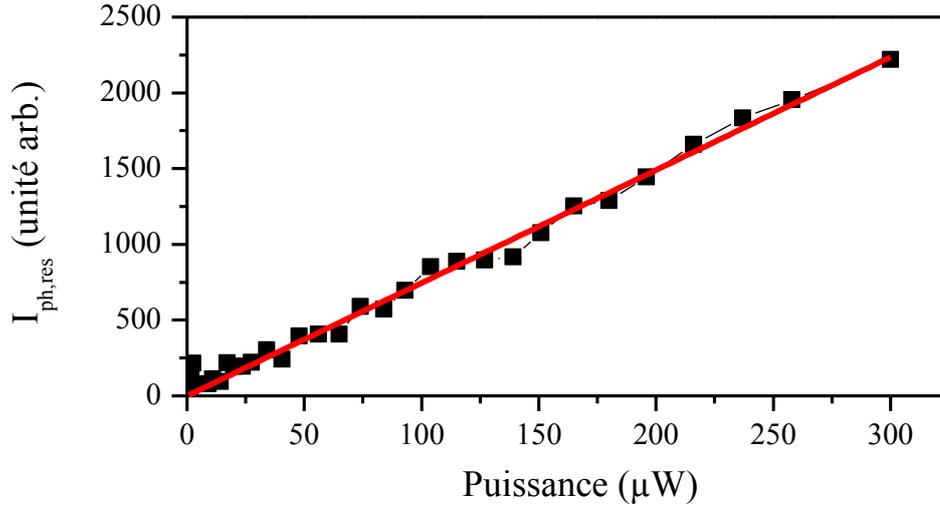


FIGURE 3.14 – Intensité des ailes de phonons auxquelles a été soustrait la dépendance à la luminescence zéro-phonon :  $I_{ph,res} = I_{ph} - \alpha I_{lum}$ . Les données sont ajustées par une fonction linéaire.

où  $J(\Omega_R)$  est la densité spectrale de phonons à la pulsation  $\Omega_R$  de l'oscillation de Rabi. On reconnaît et on identifie alors l'expression du temps de cohérence :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \coth\left(\frac{\hbar\Omega}{2k_B T}\right) \quad (3.38)$$

Le terme  $J(\Omega_R)$  dans cette équation fait bien ressortir le caractère résonant du couplage entre l'état habillé et les phonons. Lorsque  $k_B T > \hbar\Omega_R/2$ , ce qui est notre cas à la température à laquelle nous travaillons ( $k_B T \approx 0,9$  meV et  $\hbar\Omega_R \approx 0,3$  meV), il est possible de faire l'approximation :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{\pi}{8} J(\Omega_R) \frac{2k_B T}{\hbar\Omega_R} \quad (3.39)$$

En notant que  $J(\Omega_R) = C\omega^3 e^{-(\omega/\omega_c)^2} \approx C\Omega_R^3$  lorsque  $\Omega_R \ll \omega_c$ , on obtient donc la relation suivante :

$$\frac{1}{T_2} \approx \frac{\pi}{4} \frac{k_B T}{\hbar} C \Omega_R^2 = \kappa T \Omega_R^2 \quad (3.40)$$

où  $\kappa$  est une constante ne dépendant que des propriétés du matériau massif GaAs. Le couplage résonant aux phonons dépend donc de la puissance d'excitation, c'est-à-dire de  $\Omega_R^2$  et conduit à une perte de cohérence proportionnelle à  $\Omega_R^2$ . Ceci corrobore les observations faites sur la luminescence des ailes-phonons, dont l'intensité augmente linéairement en  $\Omega_R^2$ . Finalement, en tenant compte d'autres phénomènes éventuels de déphasage pur qui ne dépendraient pas de la puissance d'excitation, nous écrivons :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{T_2^*} + \kappa T \Omega_R^2 \quad (3.41)$$

où  $T_2^*$  est le temps caractéristique d'autres processus de déphasage pur, et les équations de Bloch à la résonance ( $\delta_L = 0$ ) se déduisent de l'équation (3.17) :

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{11}(t) = -i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) - \frac{\sigma_{11}(t)}{T_1} \\ \dot{\sigma}_{00}(t) = -\dot{\sigma}_{11}(t) \\ \dot{\sigma}_{01}(t) = +i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \sigma_{01}(t) \left( \frac{1}{T_2^*} + \kappa T \Omega_R^2 \right) \\ \dot{\sigma}_{10}(t) = -i\frac{\Omega_R}{2}(\sigma_{11}(t) - \sigma_{00}(t)) - \sigma_{10}(t) \left( \frac{1}{T_2^*} + \kappa T \Omega_R^2 \right) \end{cases} \quad (3.42)$$

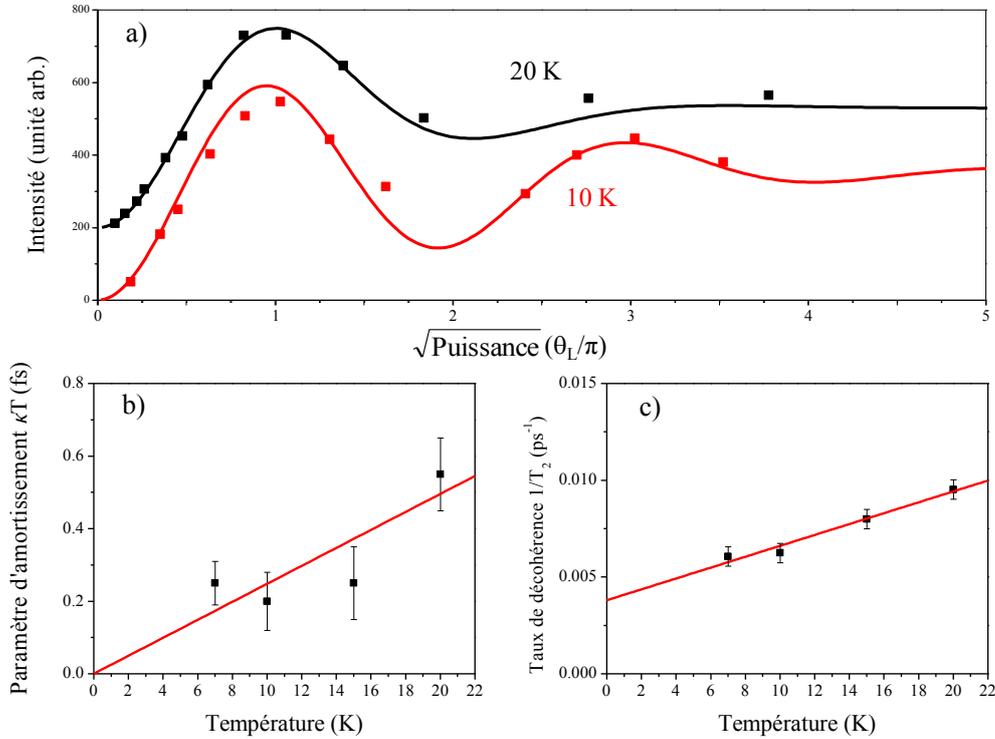


FIGURE 3.15 – a) Oscillations de Rabi de la boîte S1A ajustée avec le modèle de couplage résonnant aux phonons LA, à 10 K (rouge) et 20 K (noir). b) Évolution du paramètre d'amortissement  $\kappa T$  en fonction de la température. c) Évolution du taux de décohérence en fonction de la température

Les oscillations de Rabi expérimentales sont ajustées avec ce modèle [134]. La figure 3.15 (a)) montre deux oscillations de Rabi effectuées sur une même boîte à 10 K et 20 K. Le paramètre d'amortissement  $\kappa T$  permettant l'ajustement des oscillations est tracé en fonction de la température (figure 3.15 (b)). L'ajustement linéaire donne

$\kappa = 25 \text{ fsK}^{-1}$ , du même ordre de grandeur que la valeur théorique de  $10 \text{ fsK}^{-1}$  [21]. Le temps de cohérence a été mesuré directement en fonction de la température, et la figure 3.15 (c) montre l'évolution du taux de décohérence  $1/T_2$ . L'ajustement linéaire donne ici le temps de décohérence pur  $T_2^* = 260 \text{ ps}$ , et en gardant  $\kappa = 25 \text{ fsK}^{-1}$ , on obtient la valeur de la pulsation de Rabi. On trouve alors la pulsation de Rabi  $\Omega_R = 0,1 \text{ ps}^{-1}$ , soit une énergie  $\hbar\Omega_R \approx 60 \text{ } \mu\text{eV}$ , ce qui est en bon accord avec la valeur de  $\Omega_R$  correspondant à la durée de l'interaction. La mesure du temps de cohérence étant faite avec des impulsions  $\pi/2$ , l'équation (3.24) permet de remonter à la pulsation de Rabi, soit  $\Omega_R = 1/2\tau_0 = 0,25 \text{ ps}^{-1}$  avec  $\tau_0 = 2 \text{ ps}$  la durée de l'impulsion.

### 3.3.3 Commentaires

Le modèle que nous avons utilisé parvient à rendre compte de la plupart des phénomènes de décohérence observés à la résonance. Cependant, ce modèle comporte plusieurs limites :

- Le temps de cohérence limité par l'émission spontanée,  $T_2 = 2T_1$ , n'est pas pris en compte dans les équations. Lorsque le temps de déphasage pur est bien plus rapide que  $2T_1$ , cette approximation ne pose pas de problèmes. Cependant la figure 3.16 montre le cas de la boîte S2B où nous avons mesuré un temps de cohérence proche de la limite radiative. L'inverse du temps de cohérence, mesuré à aire d'impulsion constante, y est représenté en fonction de la température. La dispersion des points expérimentaux est très certainement liée au temps  $T_2^*$  qui varie d'un jour sur l'autre. Pour rendre compte du comportement à basse température, nous ajoutons ici un point à température nulle tel que  $T_2 = 2T_1$ . Les données ont été ajustées par deux fonctions :

$$\begin{aligned} \frac{1}{T_2} &= A \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right), \text{ et} \\ \frac{1}{T_2} &= \frac{1}{2T_1} + A \coth\left(\frac{\hbar\Omega_R}{2k_B T}\right) \end{aligned} \quad (3.43)$$

où la limite radiative du temps de cohérence est ajoutée dans la deuxième expression, et  $A$  est un paramètre ajustable. Nous remarquons que le meilleur ajustement est obtenu à l'aide de la première expression, notamment pour les points à faible puissance. Pour réaliser cet ajustement, il faut  $A = \frac{1}{2T_1}$  alors que dans le cadre du modèle  $A = \frac{\pi}{8} J(\Omega_R)$  est fixé et ne doit pas dépendre du temps de vie radiatif. Au contraire, la deuxième expression d'ajustement, prenant en compte explicitement le temps de vie radiatif, fournit un ajustement moins bon des données. Pour l'instant ce problème n'est pas résolu.

- Ramsay *et al.* ont proposé une extension à leur modèle pour tenir compte des phénomènes à très fortes puissances [107]. Ils démontrent qu'une renormalisation

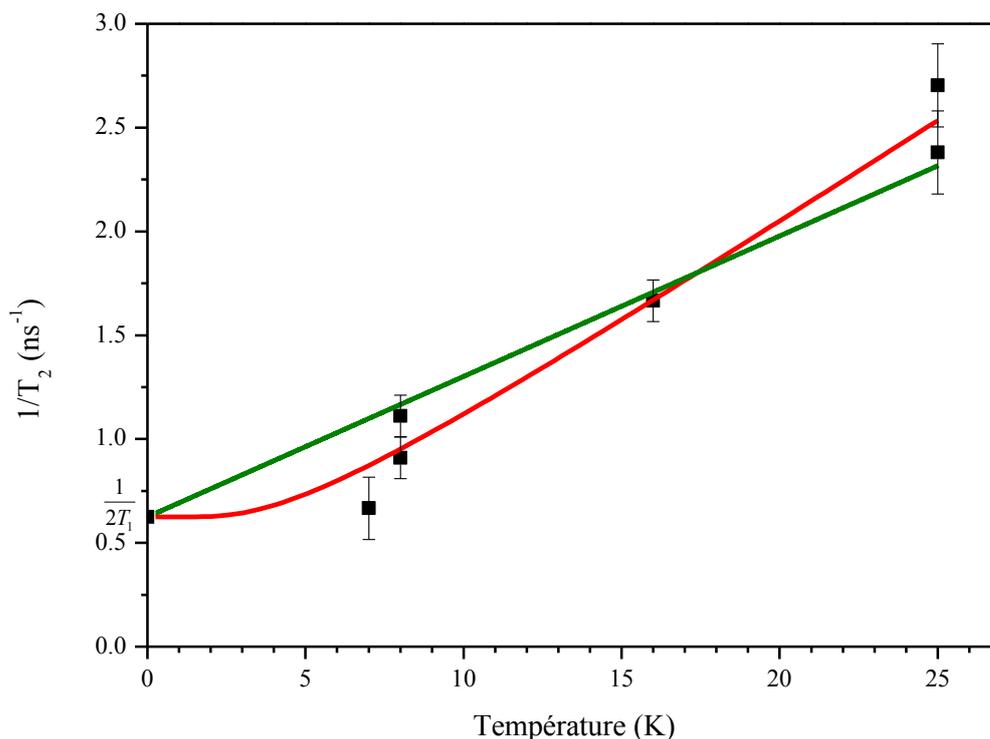


FIGURE 3.16 – Taux de décohérence,  $1/T_2$ , en fonction de la température de la boîte S2B avec un temps de cohérence proche de la limite radiative. Les ajustements sont obtenus à partir de l'équation 3.43. La courbe rouge utilise la première expression et la courbe verte la seconde, en fixant comme ordonnée à l'origine le point  $T_2 = 2T_1$ .

de la fréquence de Rabi avec la puissance d'excitation se produit, modifiant l'expression du terme de cohérence dans les équations de Bloch, ce qui a été observé par quelques groupes [107, 132].

### 3.4 Modification de la durée de vie à la résonance

Comme le montre la figure 3.17 pour la boîte S3A, le temps de vie mesuré à la résonance (en noir) est toujours significativement plus court que celui hors résonance (en rouge) [16, 134]. D'une boîte à l'autre, le facteur entre les deux temps de vie varie entre 0,75 et 0,9. Cet effet permet de s'approcher de la limite radiative plus aisément, en diminuant l'importance de la contribution du terme de déphasage pur  $T_2^*$ . Même si l'accélération de la durée de vie lors d'une excitation résonante a été observée par d'autres groupes [135, 136], aucun modèle microscopique n'existe à ce jour permettant de le comprendre complètement. Le modèle développé ici est un modèle phénoménologique élaboré à partir de différentes approches existant dans la littérature et qui nous a permis de comprendre nos observations expérimentales.

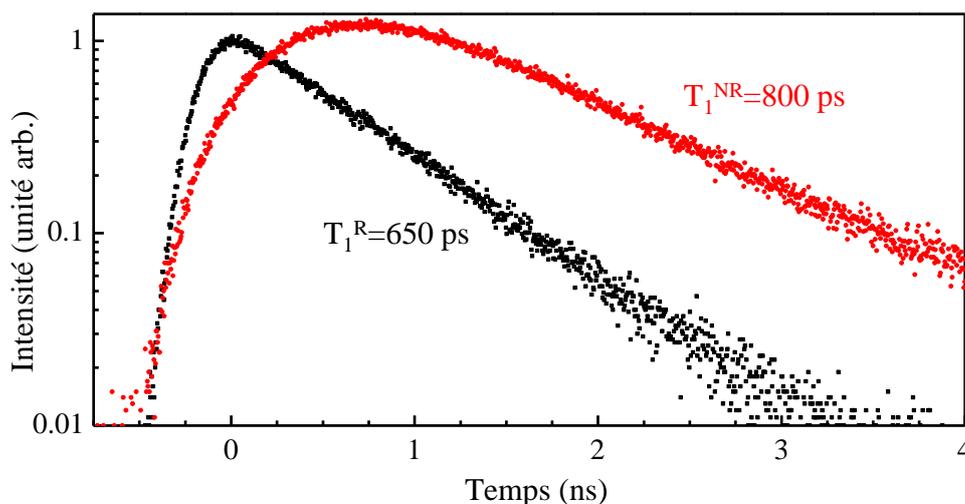


FIGURE 3.17 – Comparaison entre le temps de vie résonant (noir) et non-résonant (rouge).

### 3.4.1 Couplage au mode guidé : Définition des grandeurs utiles

Le couplage entre la boîte quantique et le guide monomode 1D joue un rôle essentiel. Il s'agit de déterminer la variation du temps de vie radiatif d'un système à deux niveaux placé au centre du guide, par rapport au temps de vie radiatif du même système à deux niveaux placé dans le vide.

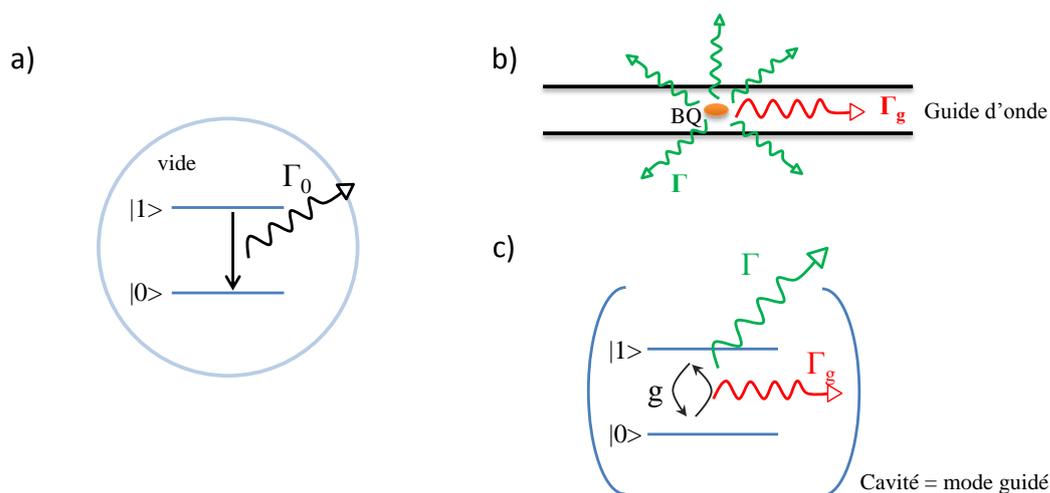


FIGURE 3.18 – a) Recombinaison radiative d'un système à deux niveaux, dans le vide, avec un taux  $\Gamma_0$ . b) Boîte quantique dans un guide d'onde unidimensionnel.  $\Gamma_g$  est le taux d'émission dans le mode guidé et  $\Gamma$  le taux d'émission dans le vide. c) Analogie avec une cavité :  $g$  est le couplage entre le système à deux niveaux et le mode guidé.

Pour cette modélisation, on définit les taux d'émission suivants :

- $\Gamma_0$  est le taux d'émission spontanée du système à deux niveaux, dans le vide. (figure 3.18 (a))
- $\Gamma$  est le taux d'émission spontanée vers les modes du vide, lorsque le système à deux niveaux est placé dans le guide (figure 3.18 (b)). Le guide d'onde peut modifier légèrement l'émission dans le vide. On définit alors le rapport :

$$f = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} \quad (3.44)$$

désignant la proportion d'émission spontanée qui ne part pas dans le mode guidé [137]. Ce rapport est généralement pris égal à 1, car la présence du guide ne modifie que peu le taux d'émission spontanée vers les modes du vide.

- $\Gamma_g$  est le taux d'émission spontanée dans le mode guidé (figure 3.18 (b)). Par analogie avec un couplage en cavité, on appelle  $F_P$  le facteur de Purcell :

$$F_P = \frac{\Gamma_g}{\Gamma_0} \quad (3.45)$$

Il a été montré [138, 139] que ce rapport peut s'écrire en fonction du couplage  $g$  entre le système à deux niveaux et la cavité comme :

$$F_P = \frac{4g^2}{\kappa\Gamma} \quad (3.46)$$

où  $\kappa$  est l'inverse du temps de fuite de la cavité.

- Le taux d'émission du système à deux niveaux que l'on mesure expérimentalement est donné par :

$$\Gamma_{mes} = \Gamma_0 + \Gamma_g \quad (3.47)$$

Toujours par analogie avec un mode de cavité (figure 3.18 (c)),  $g$  est défini par [72] :

$$g^2 = \frac{(N+1)}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \frac{\pi e^2 f_o}{mV_{mode}} \equiv (N+1)g_0^2 \quad (3.48)$$

où  $N$  est le nombre de photons dans le mode à la résonance,  $\epsilon_r$  ( $\epsilon_0$ ) est la permittivité relative (resp. du vide),  $m$  la masse de l'électron libre,  $e$  la charge de l'électron,  $V_{mode}$  le volume du mode auquel est couplée la boîte, et  $f_o$  la force d'oscillateur de la transition optique. On définit  $g_0$  comme le couplage au mode en absence de photon à la résonance dans la cavité. La force d'oscillateur dépend de l'énergie  $\hbar\omega_0$  et du moment dipolaire  $\mu$  de la transition :

$$f_o = \frac{2m\omega_0\mu^2}{3e^2\hbar}, \text{ et} \quad (3.49)$$

$$\mu^2 = \frac{\sigma_0}{T_2} \frac{3\epsilon_0\hbar nc}{\pi\omega_0}$$

où  $\sigma_0$  est la section efficace d'absorption de la boîte quantique,  $n$  est l'indice du milieu,  $c$  la vitesse de la lumière et  $T_2$  le temps de cohérence du système à deux niveaux. Pour la suite nous prendrons le système dans sa limite radiative, où  $T_2 = 2T_1$  et  $1/T_2 = \Gamma_0/2$ . Le facteur 3 dans l'expression de la force d'oscillateur vient du fait que l'on a considéré qu'elle est la même suivant les trois directions de l'espace et qu'on ne considère ici que l'émission dans la direction du guide [140]. Le volume du mode dans le cas du guide peut s'écrire :

$$V_{mode} = sl_0 = sT_{int} \frac{c}{n} \quad (3.50)$$

où  $s$  est la section du mode et  $l_0$  la "longueur d'interaction" du photon dans le mode unidimensionnel avec le système à deux niveaux, prise égale au temps caractéristique de l'interaction entre le système à deux niveaux et le mode guidé  $T_{int}$  [141] multiplié par  $c/n$  la vitesse de la lumière dans le milieu. Ce temps  $T_{int}$  varie en fonction du système étudié. Il peut s'agir soit :

- du temps de fuite d'une cavité,  $1/\kappa$  (figure 3.18 (c)),
- du temps de cohérence  $T_2$  d'un système à deux niveaux sous excitation continue résonante,
- de la durée  $\tau_0$  de l'impulsion lors d'une excitation résonante impulsionnelle lorsque  $\tau_0 \ll T_2$ . Dans l'analogie que nous faisons entre le mode guidé et un mode de cavité, on considère que le temps de fuite de la cavité est donné par la durée de l'impulsion et  $\tau_0 = 1/\kappa$ .

Le couplage peut alors s'écrire, avec  $\epsilon_r = n^2$  :

$$g_0^2 = \frac{cn^2\sigma_0}{2\pi\epsilon_r s c T_{int}} \frac{\Gamma_0}{2} = \frac{1}{4\pi} \frac{\sigma_0}{s} \frac{1}{T_{int}} \Gamma_0 \quad (3.51)$$

et on appelle :

$$N_0 = \frac{s}{\sigma_0} \quad (3.52)$$

le rapport de la section du mode et de la section efficace de la boîte quantique.  $N_0$  correspond en fait au nombre de photons dans le mode nécessaires pour que la boîte en absorbe 1. Une impulsion à  $N_0$  photons correspondra alors à une impulsion  $\pi$ .

A partir des équations (3.51), (3.45), et (3.46), et en prenant  $1/\kappa = T_{int}$ , on trouve :

$$\Gamma_g = \frac{1}{\pi} \frac{N+1}{N_0} \Gamma_0 \quad (3.53)$$

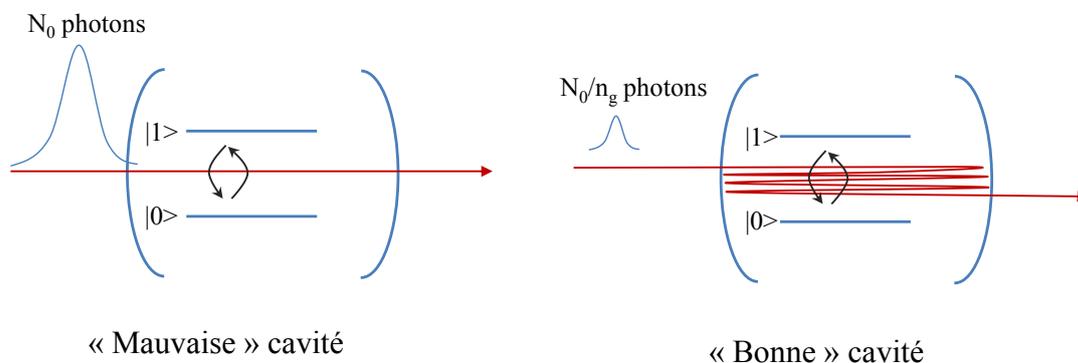


FIGURE 3.19 – a) L'effet de l'excitation non résonante peut s'apparenter à une cavité désaccordée par rapport à la transition optique de la boîte (ou mauvaise cavité), alors que b) l'excitation résonante s'apparente à une cavité bien accordée (bonne cavité).

### 3.4.2 Excitation non résonante vs excitation résonante

La différence de couplage entre la boîte quantique et la lumière qui résulte du type d'excitation (non-résonante ou résonante) peut se traduire de la manière suivante :

- Hors résonance :** Le couplage au mode guidé est très proche du couplage au vide. Le guide s'apparente alors à une "mauvaise cavité" (figure 3.19 (a)). Les photons ne font pas d'aller-retour, et pour absorber un photon, il faut que le mode contienne  $N = N_0$  photons.
- A la résonance :** Le système à deux niveaux est en couplage fort avec le mode guidé. Nous pouvons ici considérer le guide comme une "bonne cavité", dans laquelle les photons feraient un certain nombre d'allers-retours avant de s'échapper (figure 3.19 (b)). Dans cette situation, le nombre de photons nécessaire dans le mode pour absorber un photon est plus faible. Nous définissons  $n_g$  comme l'augmentation du couplage entre la boîte et la cavité :

$$g^2 = (N + 1)n_g g_0^2 \quad (3.54)$$

Ainsi, pour absorber un photon, le mode guidé doit en contenir réellement  $N_0^{eff}$  :

$$N_0^{eff} = \frac{N_0}{n_g} \quad (3.55)$$

Il convient alors de ré-écrire  $\Gamma_g$  pour une excitation résonante comme :

$$\Gamma_g = \frac{N + 1}{\pi N_0^{eff}} \Gamma_0 = \frac{(N + 1) n_g}{\pi N_0} \Gamma_0 \quad (3.56)$$

Lorsque  $n_g g_0^2 > \kappa, \Gamma$ , on entre alors dans le régime de couplage fort permettant l'observation des oscillations de Rabi. L'augmentation du couplage à la résonance par le facteur  $n_g$  correspond à une modification de l'indice de groupe qui intervient dans le calcul du volume de mode. Ainsi on ré-écrit ce volume comme :

$$V_{mode} = \frac{sT_{int}c}{nn_g} \quad (3.57)$$

où  $nn_g$  est l'indice de groupe dû au couplage fort. Cette variation peut être évaluée à partir des résultats obtenus dans le cas d'un milieu absorbant [142]. Elle s'écrit :

$$n_g \equiv 1 + \frac{\omega}{n} \frac{dn}{d\omega} \approx \frac{\alpha_0 c}{2n\gamma} \quad (3.58)$$

où  $\alpha_0$  est l'absorption proportionnelle à la densité du milieu absorbant, ici au nombre de boîtes quantiques en interaction avec l'impulsion :  $\alpha_0 \approx 1/l_0$ .  $\gamma$  représente la largeur caractéristique de la raie d'absorption et dans notre cas  $\gamma = \Gamma_0/2$ . Ainsi, on trouve

$$n_g \approx \frac{c}{nl_0\Gamma_0} = \frac{1}{\tau_0\Gamma_0} \quad (3.59)$$

Avec une impulsion de l'ordre de la picoseconde et un temps de vie de l'ordre de la nanoseconde, on trouve que  $n_g \approx 10^3$ .

### 3.4.3 Évaluation du taux d'émission et ajustement des oscillations de Rabi

Afin d'évaluer l'influence du couplage résonant sur l'évolution du temps de vie, il faut d'abord évaluer  $N_0$ , le rapport des sections efficaces  $\sigma_0$  d'absorption de la boîte et la section,  $s$ , du mode du guide d'onde. Pour une boîte émettant à la longueur d'onde  $\lambda = 920$  nm, en prenant  $\mu = 10$  [72] et  $n = 3,6$  dans le GaAs, on a :

$$\sigma_0 = \frac{\pi\omega_0}{3c\epsilon_0\hbar n} \mu^2 \frac{2}{\Gamma_0} = \frac{2\pi^2\mu^2}{3\epsilon_0\hbar n\lambda} \frac{2}{\Gamma_0} = 0,3 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}^2 \quad (3.60)$$

La section efficace du guide d'onde a été calculée et vaut  $s = 0,24 \mu\text{m}^2$ . On en déduit alors  $N_0 \approx 100$ . Ainsi :

- Lors d'une excitation **non-résonante**, aucun photon n'est dans le mode résonant unidimensionnel, et  $N = 0$ . L'ordre de grandeur de  $\Gamma_0/2$  est de  $0,5 \text{ ns}^{-1}$ . On arrive alors au taux d'émission dans le guide :

$$\Gamma_g^{NR} = \frac{1}{\pi N_0} \Gamma_0 \approx 6 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1} \ll \Gamma_0 \approx 10^9 \text{ s}^{-1} \quad (3.61)$$

Le couplage au guide ne modifie pas le temps de vie mesuré, qui correspond alors au temps d'émission dans le vide  $\Gamma_0$ .

- Pour une excitation **résonante impulsienne**,  $N \neq 0$ . Dans le cas d'une boîte au centre du mode, le rapport  $n_g/N_0 \gg 1$  et le couplage au guide est alors très fort. Lors de la recombinaison de l'état excité de la boîte, les photons émis sont couplés au mode du guide, et en principe on ne devrait pas observer de luminescence lorsqu'on collecte perpendiculairement à la direction de propagation du guide. Lorsque la boîte n'est pas au centre du mode, alors le nombre nécessaire à l'absorption d'un photon est plus grand, et le couplage au mode devient moins fort. On a alors :

$$\Gamma_g^R = \frac{(N+1)}{\pi} \frac{n_g}{N_0} \Gamma_0 \quad (3.62)$$

où  $N_0$  dépend donc de la position de la boîte dans le mode électromagnétique guidé. Grâce à l'augmentation du couplage, le taux d'émission dans le guide n'est plus négligeable et la mesure du taux d'émission total est modifiée. A partir de la relation (3.47), on trouve le taux d'émission mesuré :

$$\Gamma_{mes}^R = \left(1 + \frac{N+1}{\pi} \frac{n_g}{N_0}\right) \Gamma_0 \approx \Gamma_0 + A\Omega_R^2 \Gamma_0 \quad (3.63)$$

où  $A$  est un facteur de proportionnalité. On voit ainsi que le taux d'émission va dépendre de la puissance d'excitation puisque  $\Omega_R^2 \propto P \propto N$ . Dans ce régime, le temps de vie de l'émetteur peut alors s'écrire :

$$\frac{1}{T_1} = \frac{1}{T_1^0} + A\Omega_R^2 \frac{1}{T_1^0} \quad (3.64)$$

où  $T_1^0$  désigne la limite du temps de vie radiatif à puissance nulle. L'équation de Bloch (3.17) en population est donc modifiée par ce couplage et s'écrit :

$$\dot{\sigma}_{11}(t) = -i\frac{\Omega_R}{2} (\sigma_{10}(t) - \sigma_{01}(t)) - \sigma_{11}(t) \left(\frac{1 + A\Omega_R^2}{T_1^0}\right) \quad (3.65)$$

Le modèle développé permet donc d'ajuster les oscillations de Rabi et de rendre compte du très fort amortissement observé pour certaines boîtes quantiques, que l'on ne pourrait expliquer uniquement par la décohérence due au couplage aux phonons. Sur la figure 3.20 (a), on peut voir une oscillation de Rabi réalisée sur la boîte S1B ajustée par ce modèle, ainsi que les ajustements des mesures du taux d'émission (b) à trois puissance d'excitation :  $\pi$ ,  $3\pi/2$  et  $5\pi/2$ . Le temps de vie non résonant est indiqué également et vaut  $T_1 = 1/\Gamma_0 = 940$  ps. Dans le cas précis de cette boîte, nous laissons libre le paramètre  $n_g/N_0$ , et l'ajustement donne  $n_g/N_0 = 0,35$ .

L'évolution du taux d'émission, ainsi que l'amortissement des oscillations de Rabi, peut donc permettre de remonter au rapport  $n_g/N_0$  et ainsi à la position de la boîte dans le guide. La figure 3.21 montre les oscillations de Rabi déjà présentées, ajustées avec le modèle développé (couplage aux phonons et couplage au mode guidé). En considérant qu'à température fixe, le couplage aux phonons ne varie pas d'une boîte

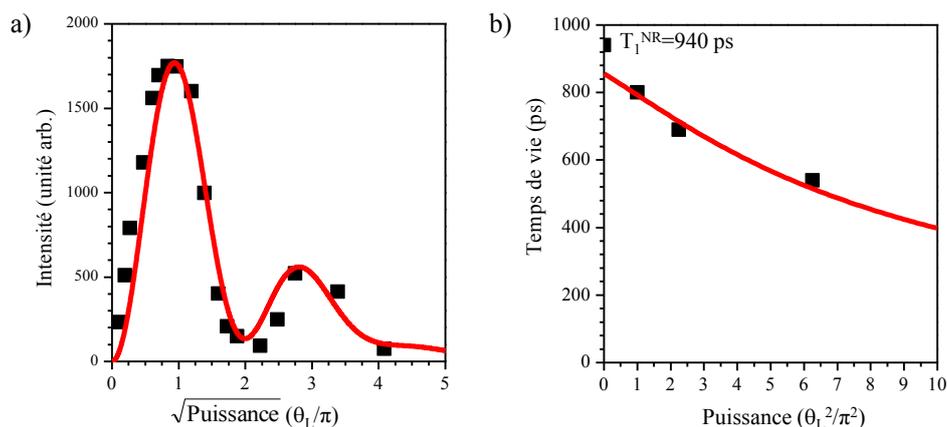


FIGURE 3.20 – a) Oscillations de Rabi avec prise en compte du couplage au mode guidé. b) Évolution de la durée de vie résonante en fonction de la puissance. A puissance nulle est indiquée la durée de vie non résonante.

à l'autre, on trouve alors le couplage au mode guidé par l'intermédiaire du paramètre  $n_g/N_0$ . Pour les boîtes que nous avons étudiées, nous trouvons que ce paramètre varie entre 0,02 et 0,35. Plus ce facteur est faible, et plus la boîte est sur le bord du mode. Ainsi, si une boîte se trouve trop à l'extérieur du mode, son couplage avec le mode guidé n'est plus suffisant pour entrer en régime de couplage fort. Cela pourrait expliquer le fait que de nombreuses boîtes ne présentent pas d'oscillations de Rabi à la résonance.

### 3.4.4 Remarque sur le sens physique du modèle

Conceptuellement, le modèle que nous avons échafaudé ci-dessus peut être difficile à concevoir. En effet, le couplage n'ayant lieu que pendant la durée de l'impulsion, il serait logique de penser que le temps de vie mesuré après le passage de l'impulsion devient à nouveau  $\Gamma_0$ . Or, nous observons bien que le temps de vie diminue sous excitation résonante, sans observer simultanément l'apparition d'un deuxième temps dans la décroissance temporelle.

Nous avons vu que le facteur  $n_g$  lié au couplage au guide peut être interprété comme l'apparition d'un indice de groupe lié à l'absorption. Ainsi la célérité du laser d'excitation au niveau de la boîte vaut  $c/(nn_g)$ , ce qui conduit à un fort ralentissement de la lumière. Cet effet est observé dans différents milieux, notamment dans les gaz atomiques [143, 144]. Ce qui est intéressant ici c'est la possibilité de ralentir la lumière à l'échelle de l'interaction avec une seule boîte quantique.

Une autre interprétation du terme  $n_g$  est de le considérer non plus comme l'augmentation du couplage  $g^2$ , mais comme l'augmentation du temps d'interaction  $T_{int} = 1/\kappa$  dans l'expression du facteur de Purcell :

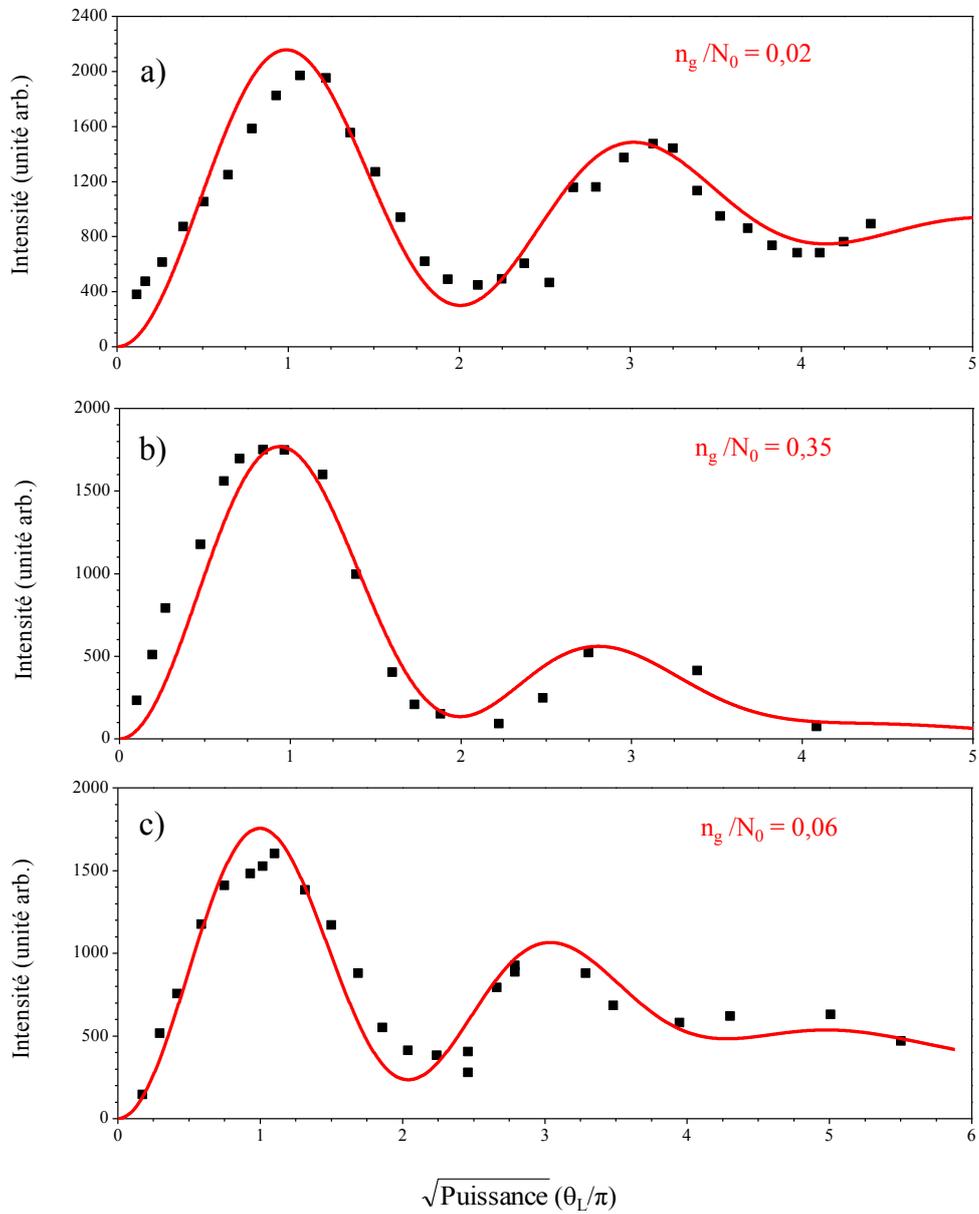


FIGURE 3.21 – Oscillations de Rabi pour trois boîtes différentes, présentant un couplage au mode guidé différent, et ajustées dans le cadre du modèle développé dans ce paragraphe.

$$F_P = \frac{g^2}{(\kappa/n_g)\Gamma_0} \quad (3.66)$$

On voit alors que le temps caractéristique sur lequel l'effet Purcell agit est  $n_g$  fois plus grand que  $\tau_0$ . Comme  $n_g$  est de l'ordre de  $10^3$  et  $\tau_0 \approx 1$  ps, le couplage à la lumière à lieu sur un temps de l'ordre de  $T_1$ , ce qui conduit à l'observation d'un seul temps de décroissance lors des mesures de durée de vie radiative.

### 3.5 Influence de la cavité sur les propriétés d'émission des boîtes

Nous avons vu dans les parties précédentes que l'interaction non-linéaire avec la lumière induit des relaxations des termes de population et de cohérences dans les équations de Bloch. Ces résultats s'appliquent très bien aux boîtes étudiées sur l'échantillon S1. Cependant, l'ajout d'une cavité à miroirs de Bragg dans les échantillons S2 et S3 semble changer l'interaction des boîtes avec la lumière.

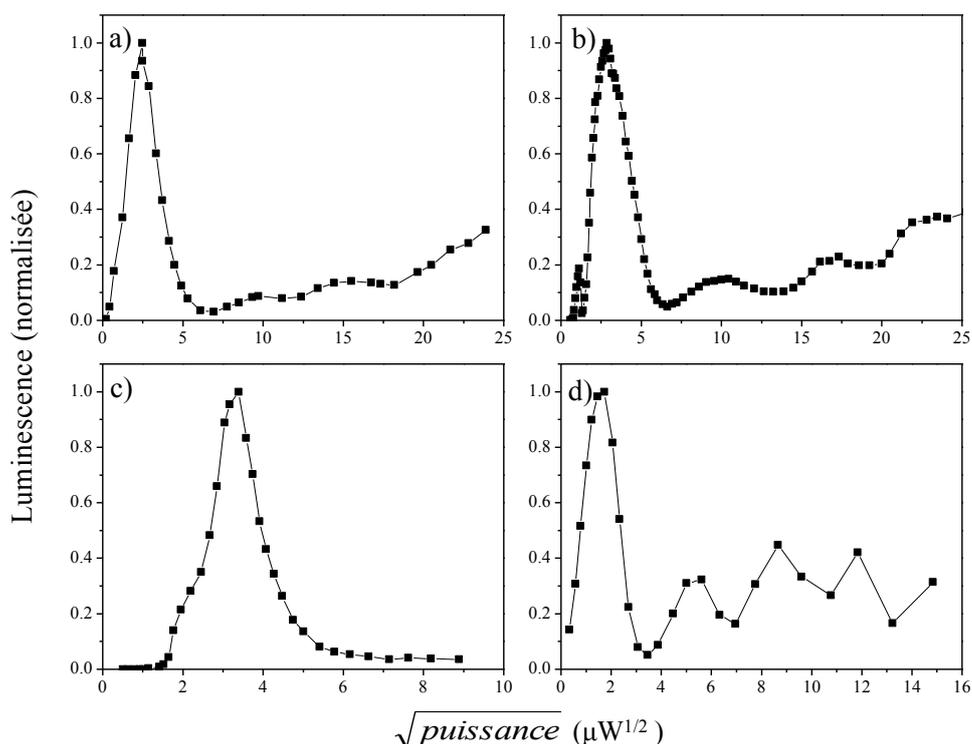


FIGURE 3.22 – Oscillations de Rabi pour les boîtes S2A (a), S2B (b), une troisième boîte de l'échantillon S2 (c), et S3A (d). Les points noirs représentent les données expérimentales. La courbe qui relie ces points sert juste d'indicateur visuel.

### 3.5.1 Effet sur les oscillations de Rabi

L'ajout de la cavité planaire pour les échantillons S2 et S3 a entraîné une modification notable du comportement des oscillations de Rabi. La figure 3.22 montre quatre oscillations de Rabi typiques pour ces échantillons. Plusieurs caractéristiques remarquables sont observées :

- Après une première oscillation de forte intensité, le signal diminue très fortement. L'intensité du signal remonte ensuite progressivement avec parfois quelques oscillations de faible amplitude (courbes (a) et (d) ).
- La première oscillation est déformée. Cela entraîne même dans le cas de l'oscillation (b) l'apparition à plus faible puissance d'un maximum secondaire. Cette petite oscillation n'est pas un artefact de mesure et est parfaitement reproductible. Cependant nous avons montré que ce maximum ne correspond pas à un état  $\pi$
- Dans certains cas, il existe une puissance seuil, avant que la première oscillation n'apparaisse, comme le montre la courbe (c).

### 3.5.2 Effet sur la durée de vie radiative

Contrairement à ce qui a été observé sur les boîtes quantiques de l'échantillon S1, le temps de vie des boîtes quantiques des échantillons S2 et S3 ne varie que très peu, voire pas du tout avec la puissance d'excitation. La figure 3.23 montre l'évolution du temps de vie des boîtes S2A et S2B en fonction de la puissance d'excitation (carrés noirs). Alors que l'oscillation de Rabi est très amortie, la variation du temps de vie avec la puissance d'excitation est beaucoup moins importante que pour la boîte S1B, dont les mesures et l'ajustement sont indiqués en rouge à titre de comparaison sur chacune des deux courbes. Pour la boîte S2A notamment, la variation du temps de vie indique que pour cette boîte, nous avons  $n_g/N_0 = 0,04$ . L'ajustement des oscillations de Rabi avec ce facteur est donné figure 3.23 (c), où l'on voit que le comportement de l'oscillation de Rabi ne peut être expliqué uniquement par le modèle que nous avons développé précédemment. Le couplage au mode guidé, bien que toujours présent dans ces échantillons, n'est a priori plus le seul phénomène influant sur le taux d'émission de la boîte. La cavité modifie également la densité d'états du champ électromagnétique environnant et cette modification pourrait suffire à expliquer cette différence.

Un modèle microscopique qui tiendrait compte de l'effet de la cavité serait souhaitable pour la compréhension de ces observations.

## 3.6 Interaction lumière-matière : Approche quantique

Afin de tenir compte de la modification importante du champ dans la cavité lors des oscillations de Rabi, nous proposons l'ébauche d'une étude quantique de notre

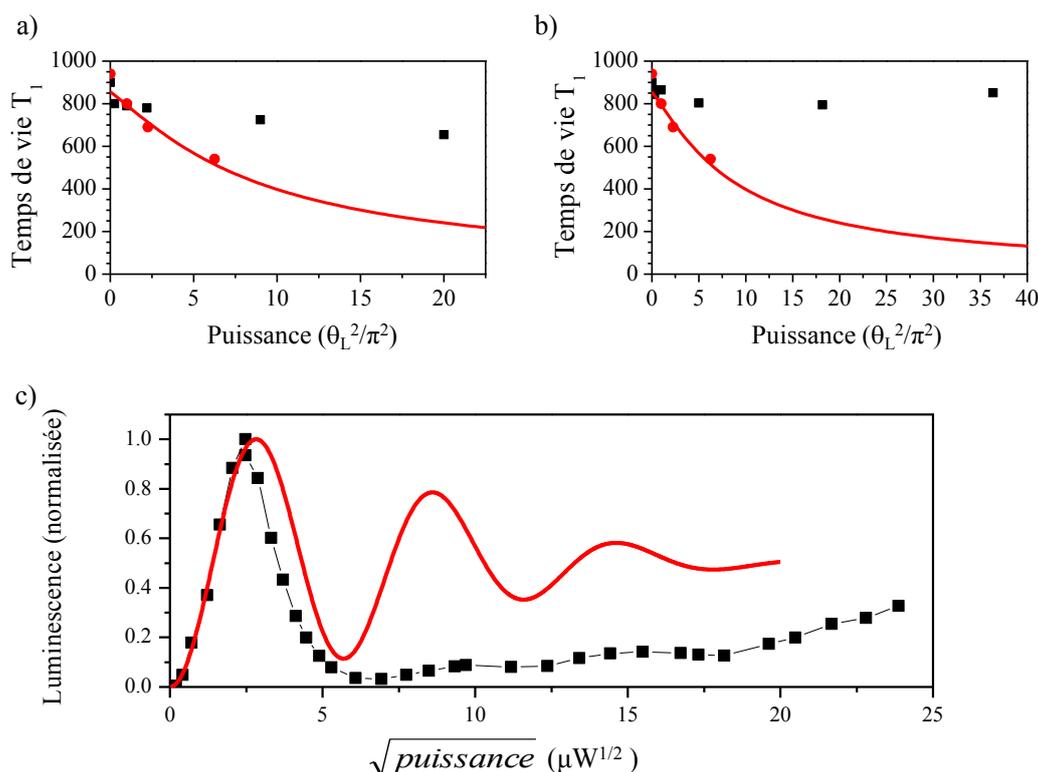


FIGURE 3.23 – Évolution du temps de vie pour les boîtes S2A (a) et S2B (b), en fonction de la puissance d’excitation. La courbe et les points en rouge représentent les résultats obtenus pour la boîte S1B. c) Oscillations de Rabi de la boîte S2A (noir) ainsi que la simulation de cette oscillation par les équations de Bloch en tenant compte du modèle et pour une facteur  $n_g/N_0 = 0,04$ .

système, avec deux objectifs principaux. Dans un premier temps, nous souhaitons expliquer avec un modèle microscopique, la variation du temps de vie liée au couplage au mode guidé. Pour cela les énergies sont prises complexes dans le hamiltonien. Ensuite, dans un deuxième temps, nous modélisons l’ajout d’une cavité à notre système d’étude. La boîte est alors couplée à deux modes privilégiés, les énergies mises en jeu ici sont réelles ce qui permet de résoudre exactement le hamiltonien. Le modèle qui suit a été développé en collaboration avec M. Combescot.

### 3.6.1 Modèle en seconde quantification d’une boîte couplée à un guide

Nous considérons maintenant un hamiltonien où le champ électromagnétique est quantifié. Le guide d’onde est modélisé par un unique mode de photons, couplé à la boîte quantique. Cet hamiltonien s’écrit

$$\hat{H} = E_a \hat{a}^\dagger \hat{a} + E_b \hat{B}^\dagger \hat{B} + \lambda \hat{a} \hat{B}^\dagger + \lambda^* \hat{B} \hat{a}^\dagger \quad (3.67)$$

où  $\lambda$  est le couplage entre le mode et la boîte, et  $\hat{a}^\dagger$  et  $\hat{B}^\dagger$  (resp.  $\hat{a}$  et  $\hat{B}$ ) sont les opérateurs de création (resp. d'annihilation) du champ électromagnétique dans le mode du guide d'énergie  $E_a$ , et de l'exciton d'énergie  $E_b$ . Ces opérateurs vérifient les lois de commutation de bosons :

$$\begin{aligned} [\hat{a}^\dagger, \hat{a}] &= 1 \\ [\hat{B}^\dagger, \hat{B}] &= 1 \end{aligned} \quad (3.68)$$

Dans une boîte quantique, le niveau biexcitonique est à une énergie différente du niveau excitonique. Comme les électrons et les trous sont des fermions, il est impossible de peupler une boîte avec deux paires électron-trou dans le même état quantique. Ceci impose :

$$\hat{B}^{\dagger 2} = 0 \quad (3.69)$$

Afin de tenir compte de la durée de vie de la boîte l'énergie  $E_b$  sera prise complexe. Il en est de même pour  $E_a$ , le guide ne pouvant être considéré comme une cavité parfaite. Ainsi,

$$\begin{aligned} E_a &= \omega_a - i\gamma_a \\ E_b &= \omega_b - i\gamma_b \end{aligned}$$

avec  $\omega$  et  $\gamma$  réels, et on définit également :

$$\Delta = E_b - E_a \neq \Delta^*$$

Le fait d'introduire la durée de vie, rend l'hamiltonien complexe non-hermitique,  $\hat{H}^\dagger \neq \hat{H}$ . Les états propres de  $\hat{H}$  ne sont pas les mêmes que ceux de  $\hat{H}^\dagger$ , ou de façon équivalente, les états propres de  $\hat{H}$  "à gauche" et "à droite" sont différents.

**États propres à droite,**  $\hat{H}|\Psi_R\rangle = E_R|\Psi_R\rangle$

On cherche à résoudre l'équation aux valeurs propres  $(\hat{H} - E_R)|\Psi_R\rangle = 0$  (l'indice  $R$  signifiant "right" en anglais). Comme pour le cas réel, les solutions de cette équation sont des combinaisons linéaires des états non couplés à  $N+1$  excitations avec  $N=0,1,\dots$  :

$$|\Psi_{R,N+1}\rangle = (x_0 \hat{a}^{\dagger(N+1)} + x_1 \hat{a}^{\dagger N} \hat{B}^\dagger)|v\rangle$$

où  $|v\rangle$  est l'état du vide à zéro photon, la boîte étant dans son état fondamental, et  $x_0$  et  $x_1$  sont des coefficients complexes. Les valeurs propres sont :

$$E_{R,N+1,\eta} = (N+1)E_a + \epsilon_{R,N+1,\eta}$$

avec  $\eta = \pm 1$  et

$$\epsilon_{R,N+1,\eta} = \frac{\Delta + \eta \sqrt{\Delta^2 + 4(N+1)|\lambda|^2}}{2}$$

Les états propres correspondants, non-normés, sont :

$$|\Psi_{R,N+1,\eta}\rangle = \hat{a}^{\dagger N} \left( \lambda^* \hat{a}^\dagger + \epsilon_{R,N+1,\eta} \hat{B}^\dagger \right) |v\rangle$$

**États propres à gauche,**  $\langle \Psi_L | \hat{H} = E_L \langle \Psi_L | \iff \hat{H}^\dagger | \Psi_L \rangle = E_L^* | \Psi_L \rangle$

Par un calcul similaire on obtient les énergies propres et les états propres, non-normés, de  $(\hat{H}^\dagger - E_L^*) | \Psi_L \rangle = 0$  (l'indice  $L$  signifiant "left" en anglais) :

$$E_{L,N+1,\eta}^* = (N+1)E_a^* + \epsilon_{L,N+1,\eta}^*$$

avec

$$\epsilon_{L,N+1,\eta}^* = \frac{\Delta^* + \eta \sqrt{\Delta^{*2} + 4(N+1)|\lambda|^2}}{2}$$

et

$$|\Psi_{L,N+1,\eta}\rangle = \hat{a}^{\dagger N} \left( \lambda^* \hat{a}^\dagger + \epsilon_{L,N+1,\eta}^* \hat{B}^\dagger \right) |v\rangle$$

On remarque que :

$$E_{L,N+1,\eta} = E_{R,N+1,\eta} \equiv E_{N+1,\eta}$$

ce que l'on retrouve directement par :

$$\langle \Psi_{L,N+1,\eta} | \hat{H} | \Psi_{R,N+1,\eta} \rangle = E_{L,N+1,\eta} \langle \Psi_{L,N+1,\eta} | \Psi_{R,N+1,\eta} \rangle = E_{R,N+1,\eta} \langle \Psi_{L,N+1,\eta} | \Psi_{R,N+1,\eta} \rangle$$

### Normalisation et relation de fermeture de la base propre

Contrairement au cas réel, la base d'états propres que nous venons d'écrire ne peut se normaliser par  $\langle \Psi_L | \Psi_L \rangle = 1 = \langle \Psi_R | \Psi_R \rangle$ . En effet, la grandeur  $\langle \Psi_R | \hat{H} | \Psi_R \rangle$  n'a pas de sens physique car développer le hamiltonien sur les "bra" ou sur les "ket", ne donnerait pas la même valeur. Par contre,  $\langle \Psi_L | H | \Psi_R \rangle$  conduit à :

$$[E_{L,N+1,\eta} - E_{R,N'+1,\eta'}] \langle \Psi_{L,N+1,\eta} | \Psi_{R,N'+1,\eta'} \rangle = 0$$

Comme  $E_{L,N+1,\eta} = E_{R,N+1,\eta}$ , cette relation est vérifiée et on est amené à normer les états propres de  $\hat{H}$  et  $H^\dagger$  par :

$$\langle \Psi_{L,N+1,\eta} | \Psi_{R,N'+1,\eta'} \rangle = \delta_{N,N'} \delta_{\eta,\eta'}$$

Cette condition de normalisation conduit pour les deux états à gauche et droite, aux expressions suivantes :

$$\begin{aligned} |\Psi_{R,N+1,\eta}\rangle &= \frac{\hat{a}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}} \frac{\lambda^* \hat{a}^\dagger + \epsilon_{R,N+1,\eta} \hat{B}^\dagger}{\sqrt{(N+1)|\lambda|^2 + \epsilon_{L,N+1,\eta}^2}} |v\rangle \\ \langle \Psi_{L,N+1,\eta}| &= \langle v| \frac{\hat{a}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}} \frac{\lambda \hat{a}^\dagger + \epsilon_{R,N+1,\eta} \hat{B}^\dagger}{\sqrt{(N+1)|\lambda|^2 + \epsilon_{L,N+1,\eta}^2}} \end{aligned} \quad (3.70)$$

La relation de fermeture sur la base propre s'écrit alors :

$$\mathbf{1} = |v\rangle\langle v| + \sum_{N=0}^{\infty} \sum_{\eta} |\Psi_{R,N+1,\eta}\rangle\langle\Psi_{L,N,\eta}|$$

### Simulation des oscillations de Rabi

A partir des états propres que nous venons de calculer, nous pouvons simuler l'évolution temporelle et retrouver les oscillations de Rabi. L'état initial de notre système est constitué de  $N + 1$  photons dans le guide d'onde. L'expérience consiste à augmenter le nombre de photons et à regarder la population dans la boîte, après le passage de l'impulsion. Pour nos simulations, cela se traduit par :

$$|\Phi(t=0)\rangle = \frac{\hat{a}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}}|v\rangle \quad (3.71)$$

L'évolution de cet état initial s'obtient en développant sur la base propre et on trouve :

$$|\Phi(t)\rangle = \sum_{\eta} e^{-iE_{N+1,\eta}t} \frac{\lambda\sqrt{N+1}}{\sqrt{(N+1)|\lambda|^2 + \epsilon_{N+1,\eta}^{*2}}} |\Psi_{R,N+1,\eta}\rangle \quad (3.72)$$

La population dans la boîte après une impulsion de durée  $T$  est donnée par l'expression  $N_B$  :

$$N_B = \langle\Phi(T)|\hat{B}^{\dagger}\hat{B}|\Phi(T)\rangle \quad (3.73)$$

Pour simplifier les calculs et pour plus de clarté, on introduit l'énergie réduite  $\chi$  définie par :

$$\chi_{N+1,\eta}^2 = \frac{\epsilon_{N+1,\eta}^2}{(N+1)|\lambda|^2} \quad (3.74)$$

On obtient alors l'expression de la population dans la boîte :

$$N_B = \sum_{\eta\eta'} \frac{e^{-i(E_{N+1,\eta} - E_{N+1,\eta'}^*)T} \chi_{N+1,\eta} \chi_{N+1,\eta'}}{\sqrt{(1 + \chi_{N+1,\eta}^2)(1 + \chi_{N+1,\eta'}^2)(1 + \chi_{N+1,\eta}^{*2})(1 + \chi_{N+1,\eta'}^{*2})}} \quad (3.75)$$

Afin de calculer l'évolution de la population de la boîte et de simuler les oscillations de Rabi, il est nécessaire de définir plus précisément les grandeurs utilisées. Pour cela, nous les comparons aux grandeurs définies dans la partie 3.4 :

- $\lambda$  est le couplage entre le mode guidé et la boîte. On prend donc  $\lambda = g_0$ . Ce couplage dépend de la position de la boîte dans le mode. Afin de reproduire les

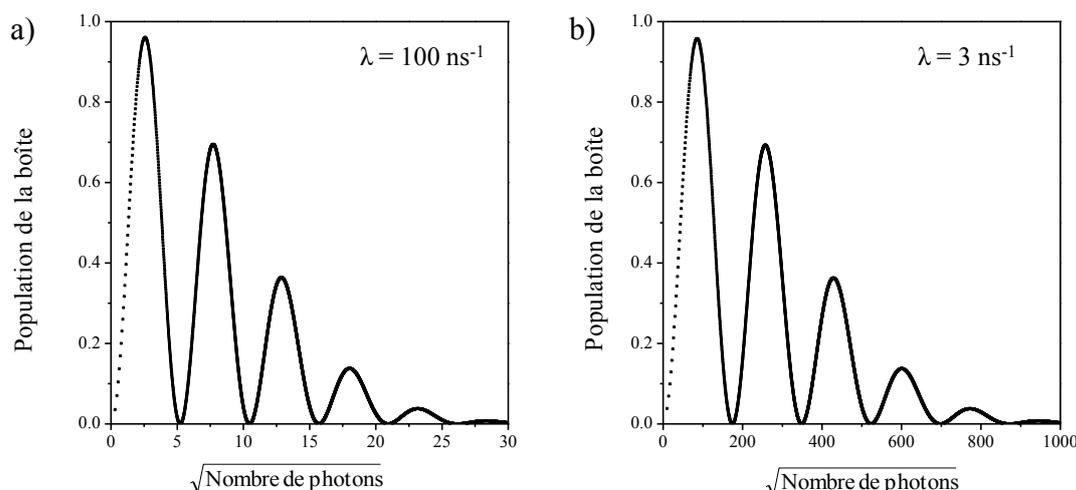


FIGURE 3.24 – Simulation des oscillations de Rabi avec  $T$  constant. a)  $\lambda = 100 \text{ ns}^{-1}$  b)  $\lambda = 3 \text{ ns}^{-1}$

comportements observés expérimentalement, il faudra donc faire varier  $\lambda$  et observer les modifications des oscillations de Rabi, en particulier concernant leur amortissement. Dans le cadre du modèle, nous considérons que l'excitation résonnante augmente le couplage et on écrit :

$$\lambda^2 \approx \frac{n_g \Gamma_0}{N_0 \tau_0} \approx n_g^2 \frac{\Gamma_0^2}{N_0} \quad (3.76)$$

- $\gamma_b$  est la durée de vie de la boîte :  $\gamma_b = \Gamma_0$ , dont l'ordre de grandeur est 1 ns. On considère donc  $\gamma_b = 1 \text{ ns}$ .
- $\gamma_a$  est le taux avec lequel le système se vide dans le mode guidé. Nous prenons donc  $\gamma_a = \Gamma_g \approx n_g \frac{\Gamma_0}{N_0}$  lorsque le mode est vide. Pour les simulations nous écrirons donc :

$$\gamma_a = \frac{\lambda^2}{\Gamma_0 n_g} \quad (3.77)$$

- $T$  est le temps au bout duquel on calcule l'état final du système et la population de la boîte. Dans un premier temps, ce temps est pris égal au temps d'interaction  $T = \tau_0 = 3 \text{ ps}$ .

A partir de ces définitions, les oscillations de Rabi en fonction du nombre de photons dans le mode peuvent être simulées. Les courbes sont tracées sur la figure 3.24 pour  $\lambda = 100 \text{ ns}^{-1}$  (figure a) et  $\lambda = 3 \text{ ns}^{-1}$  (figure b) correspondant à un rapport  $N_0/n_g$  compris entre 0,1 et  $10^{-4}$ . L'échelle a été choisie de telle sorte à pouvoir comparer les oscillations de Rabi entre elles. On constate alors que l'amortissement ne varie pas, ce qui est contradictoire avec les résultats expérimentaux.

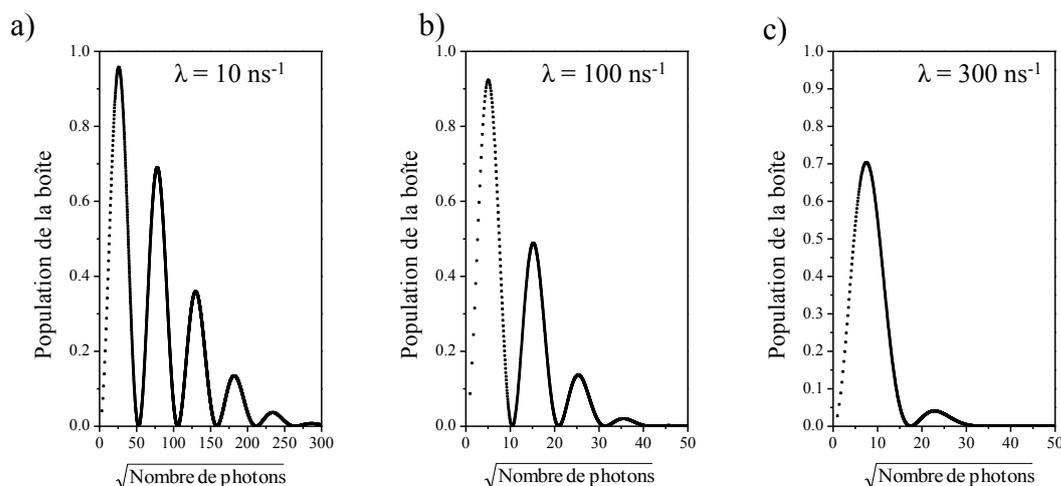


FIGURE 3.25 – Simulation des oscillations de Rabi avec  $T \propto 1/\Gamma_{mes}$ . a)  $\lambda = 10 \text{ ns}^{-1}$  b)  $\lambda = 100 \text{ ns}^{-1}$  c)  $\lambda = 300 \text{ ns}^{-1}$

Afin d’aller plus loin dans la modélisation, nous prenons en compte la modification du temps d’interaction en couplage résonant. Nous avons vu dans la partie 3.4, que le facteur  $n_g$  peut être considéré soit comme une augmentation du couplage, soit comme un allongement du temps d’interaction. De plus, les simulations précédentes nous montrent que pour observer une modification des oscillations de Rabi avec le couplage, il est nécessaire que  $T$  varie avec la puissance d’excitation. Nous écrivons donc :

$$T \propto \frac{1}{\Gamma_0 + \Gamma_g} = \frac{1}{\Gamma_{mes}} \quad (3.78)$$

Plus précisément, la modification du temps d’interaction est reliée au temps de vie du système à deux niveaux dans la structure. Ce temps diminuera lorsque le couplage entre la boîte et la mode guidé augmente. Deux cas sont à considérer :

— Si on considère que le facteur  $n_g$  augmente le couplage, alors  $T$  doit s’écrire :

$$T = \tau_0 \frac{\Gamma_0}{\Gamma_0 + \Gamma_g} \quad (3.79)$$

— Si on contraire,  $n_g$  augmente le temps d’interaction  $T$ ,  $\lambda^2$  est divisé par  $n_g$  et :

$$T = \frac{1}{\Gamma_0} \frac{\Gamma_0}{\Gamma_0 + \Gamma_g} \quad (3.80)$$

Dans ce deuxième cas, les simulations ont montré l’existence de points divergents, probablement dus au calcul numérique des racines complexes. Nous ne montrons donc que les résultats du premier cas. La figure 3.25 montre trois oscillations de Rabi en fonction du nombre de photons dans le mode, pour  $\lambda = 10 \text{ ns}^{-1}$  (figure a),

$\lambda = 100 \text{ ns}^{-1}$  (figure b) et  $\lambda = 300 \text{ ns}^{-1}$  (figure c). On constate alors que l'amortissement des oscillations de Rabi augmente avec le couplage, ce qui est conforme aux observations expérimentales. Cela montre bien que l'amortissement des oscillations de Rabi est lié au couplage entre la boîte et le guide, entraînant une stimulation de l'émission du système à deux niveaux dans le mode guidé, confirmant les hypothèses formulées dans la partie 3.4.

Cependant, les rapports  $N_0/n_g$  utilisés pour ces simulations sont bien inférieurs à ceux mesurés lors des expériences, et trois ordres de grandeurs sont nécessaires pour passer d'une oscillation faiblement amortie à une oscillation fortement amortie. La prochaine étape de ce travail consistera à affiner le modèle, de sorte que les simulations montrent l'équivalence entre d'un côté, l'augmentation par le facteur  $n_g$  du couplage et de l'autre, la durée d'interaction.

### 3.6.2 Modèle avec cavité

Dans cette partie, nous voulons modéliser le même système que dans la partie 3.6.1, mais dans lequel nous ajoutons un couplage au mode de la cavité. Contrairement à la partie précédente, pour pouvoir résoudre le hamiltonien, il faut que les énergies soient réelles, c'est-à-dire que dans cette première approche les temps de vie ne seront pas pris en compte.

Le hamiltonien décrivant le système {photon de guide - photon de cavité - boîte} s'écrit :

$$\hat{H} = E_c \hat{a}_c^\dagger \hat{a}_c + E_g \hat{a}_g^\dagger \hat{a}_g + E_b \hat{B}^\dagger \hat{B} + \lambda_c \hat{a}_c \hat{B}^\dagger + \lambda_c^* \hat{B} \hat{a}_c^\dagger + \lambda_g \hat{a}_g \hat{B}^\dagger + \lambda_g^* \hat{B} \hat{a}_g^\dagger \quad (3.81)$$

où  $E_c$  et  $E_g$  sont respectivement les énergies des modes de photons de la cavité et du guide.  $\lambda_c$  (resp.  $\lambda_g$ ) est le couplage entre les photons de cavité (resp. du guide) et la boîte.  $\hat{H}$  est hermitique ( $\hat{H} = \hat{H}^\dagger$ ) même si les couplages  $\lambda_c$  et  $\lambda_g$  peuvent être complexes.

Comme les photons générés ont une énergie fixée par le laser d'excitation et que le mode de cavité est plus large que le mode du laser, on se restreindra à fixer l'énergie telle que :

$$E_c = E_g = E_0, \text{ et}$$

$$E_b = E_0 + \Delta$$

Cela permet de réécrire l'hamiltonien de la manière suivante :

$$\hat{H} = E_0 (\hat{a}_c^\dagger \hat{a}_c + \hat{a}_g^\dagger \hat{a}_g) + (E_0 + \Delta) \hat{B}^\dagger \hat{B} + \lambda_c \hat{a}_c \hat{B}^\dagger + \lambda_c^* \hat{B} \hat{a}_c^\dagger + \lambda_g \hat{a}_g \hat{B}^\dagger + \lambda_g^* \hat{B} \hat{a}_g^\dagger \quad (3.82)$$

Une des énergies propres de cet hamiltonien est  $E_0$ . Pour le voir facilement, on introduit les opérateurs  $\hat{\alpha}$  et  $\hat{\beta}$  :

$$\hat{\alpha} = \frac{\lambda_c \hat{a}_c + \lambda_g \hat{a}_g}{\Omega}$$

$$\hat{\beta} = \frac{\lambda_g^* \hat{a}_c - \lambda_c^* \hat{a}_g}{\Omega}$$

où  $\Omega^2 = |\lambda_c|^2 + |\lambda_g|^2$ . Les nouveaux opérateurs sont tels que  $[\hat{\alpha}, \hat{\alpha}^\dagger] = [\hat{\beta}, \hat{\beta}^\dagger] = 1$  et  $[\hat{\alpha}, \hat{\beta}^\dagger] = 0$ . Il est aisé de vérifier que :

$$\hat{\alpha}^\dagger \hat{\alpha} + \hat{\beta}^\dagger \hat{\beta} = \hat{a}_c^\dagger \hat{a}_c + \hat{a}_g^\dagger \hat{a}_g$$

L'hamiltonien peut donc s'écrire :

$$\hat{H} = E_0 \left( \hat{\alpha}^\dagger \hat{\alpha} + \hat{\beta}^\dagger \hat{\beta} \right) + (E_0 + \Delta) \hat{B}^\dagger \hat{B} + \Omega \left( \hat{\alpha} \hat{B}^\dagger + \hat{B} \hat{\alpha}^\dagger \right) \quad (3.83)$$

On remarque alors que le mode de photon  $\hat{\beta}$  n'est pas couplé à la boîte, et on peut donc écrire l'hamiltonien sous la forme d'une somme d'un hamiltonien couplé  $\hat{H}_c$  et d'un hamiltonien non-couplé  $\hat{H}_{nc}$  :

$$\begin{cases} \hat{H}_c = E_0 \hat{\alpha}^\dagger \hat{\alpha} + E_b \hat{B}^\dagger \hat{B} + \lambda \hat{\alpha} \hat{B}^\dagger + \Omega^* \hat{B} \hat{\alpha}^\dagger \\ \hat{H}_{nc} = E_0 \hat{\beta}^\dagger \hat{\beta} \end{cases}$$

Les états propres de ce hamiltonien seront ainsi le produit tensoriel des états propres des deux hamiltoniens. Le hamiltonien  $\hat{H}_{nc}$  a pour états propres, les états à  $N$  photons dans le mode  $\hat{\beta}$  et leur énergie est  $NE_0$ .

Il reste maintenant à trouver les états propres de  $\hat{H}_c$ , qui n'est autre que l'hamiltonien résolu au paragraphe 3.6.1 avec des énergies complexes. Ses états propres pour  $E_a$  et  $E_b$  réels s'écrivent :

$$|\Psi_{N+1,\eta}\rangle = \frac{\hat{\alpha}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}} \frac{\Omega \hat{\alpha}^\dagger + \epsilon_{N+1,\eta} \hat{B}^\dagger}{\sqrt{(N+1) |\Omega|^2 + \epsilon_{N+1,\eta}^2}} |v\rangle$$

Les états propres du système total du hamiltonien  $\hat{H}$  sont alors :

$$|\Psi_{M,N+1,\eta}\rangle = \frac{\hat{\beta}^{\dagger M}}{\sqrt{M!}} \frac{\hat{\alpha}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}} \frac{\Omega \hat{\alpha}^\dagger + \epsilon_{N+1,\eta} \hat{B}^\dagger}{\sqrt{(N+1) \Omega^2 + \epsilon_{N+1,\eta}^2}} |v\rangle \quad (3.84)$$

où on rappelle que  $\eta = \pm 1$ . Les énergies propres associées étant :

$$E_{M,N+1,\eta} = (M + N + 1) E_0 + \epsilon_{N+1,\eta}$$

$$\epsilon_{N+1,\eta} = \frac{\Delta^* + \eta \sqrt{\Delta^{*2} + 4(N+1)\Omega^2}}{2}$$

### Evolution de la population en fonction de la durée d'interaction

Nous pouvons maintenant calculer l'évolution du système en fonction du temps avec, pour état initial, les états à  $N$  photons dans le mode  $\hat{\beta}$  et à  $N + 1$  photons dans le mode  $\hat{\alpha}$  :

$$\begin{aligned} |\Phi_\beta(t=0)\rangle &= \frac{\hat{\beta}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}}|v\rangle & \rightarrow |\Phi_\beta(t)\rangle &= e^{-iNE_0t} \frac{\hat{\beta}^{\dagger N}}{\sqrt{N!}}|v\rangle \\ |\Phi_\alpha(t=0)\rangle &= \frac{\hat{\alpha}^{\dagger N+1}}{\sqrt{(N+1)!}}|v\rangle & \rightarrow |\Phi_\alpha(t)\rangle &= \sum_\eta \frac{e^{-iE_{0,N+1,\eta}t}}{\sqrt{1+\chi_{N+1,\eta}^2}} |\Psi_{0,N+1,\eta}\rangle \end{aligned} \quad (3.85)$$

où l'on défini  $\chi$  comme dans la partie précédente par :

$$\chi_{N+1,\eta} = \frac{\epsilon_{N+1,\eta}^2}{(N+1)|\Omega|^2} \quad (3.86)$$

Cependant, ces deux états initiaux ne sont pas les états que nous injectons expérimentalement dans le système. Pour effectuer nos expériences d'oscillation de Rabi, nous introduisons  $N + 1$  photons dans le mode du guide  $\hat{a}_g$  :

$$\hat{a}_g = \frac{\lambda_g^* \hat{\alpha} - \lambda_c \hat{\beta}}{\Omega} \quad (3.87)$$

et l'état initial s'écrit :

$$|\Phi(t=0)\rangle = \frac{\hat{a}_g^{\dagger N+1}}{\sqrt{(N+1)!}}|v\rangle = \left( \frac{\lambda_g^* \hat{\alpha}^\dagger - \lambda_c \hat{\beta}^\dagger}{\Omega} \right)^{N+1} \frac{1}{\sqrt{(N+1)!}}|v\rangle \quad (3.88)$$

En utilisant l'équation intermédiaire (3.83), et après plusieurs étapes de calcul, on arrive à l'expression de la population de la boîte à  $t$ ,  $N_B(t)$  :

$$\begin{aligned} N_B(t) &= \frac{1}{\Omega^{2(N+1)}} \sum_{k=0}^N \binom{N+1}{k+1} |\lambda_c|^{2(k+1)} |\lambda_g|^{2(N-k)} \\ &\quad \left[ \frac{\chi_{k+1,+1}^2}{(1+\chi_{k+1,+1}^2)^2} + \frac{\chi_{k+1,-1}^2}{(1+\chi_{k+1,-1}^2)^2} + \frac{2 \cos\left(\sqrt{\Delta^2 + 4(k+1)\Omega^2 t}\right)}{(1+\chi_{k+1,+1}^2)(1+\chi_{k+1,-1}^2)} \right] \end{aligned} \quad (3.89)$$

### Simulation des oscillations de Rabi

Pour rendre compte de l'influence de la cavité sur les oscillations de Rabi, deux simulations ont été faites et sont présentées figure 3.26. Les oscillations ont été simulées numériquement, limitant les possibilités de calcul (paramètre lié à l'ordinateur), notamment pour les grands nombres. Ceci limite le nombre  $N$  maximal et fixe également des contraintes sur les valeurs des couplages.

Dans chacune des deux simulations, le couplage au guide  $\lambda_g$  est fixé à 50 (unité arbitraire), permettant une observation des oscillations de Rabi. Ceci n'a pas d'influence sur les conclusions finales, le paramètre important étant  $\lambda_c/\lambda_g$ . Dans un premier temps, l'oscillation de Rabi est tracée en fonction du nombre de photons dans la cavité (figure 3.26 (a)) et la durée de l'impulsion est fixée à  $T = 0,01$  en unité arbitraire. Comme le temps de vie du système à deux niveaux n'est pas pris en compte, l'échelle temporelle sert seulement d'indicateur. La valeur de 0,01 a été choisie pour qu'une impulsion  $\pi$  contienne 10 photons environs pour  $\lambda_c=0$ . On retrouve alors une oscillation de Rabi caractéristique d'un système à deux niveaux où la population oscille périodiquement entre 0 et 1. En augmentant le couplage à la cavité, les photons du mode guidé sont diffusés dans le mode de cavité par l'intermédiaire de la boîte, modifiant les oscillations de Rabi : sa période augmente et on observe un amortissement.

Dans un second temps, le nombre de photons dans le guide est fixé à  $N = 10$ , et on s'intéresse à l'évolution de la population  $N_B(t)$  pendant la durée de l'impulsion, fixée ici à  $T = 0,1$ . La figure 3.26 (b) représente l'oscillation de Rabi temporelle en fonction de  $\lambda_c$ . Cette simulation se compare donc à la figure 3.6. Cependant, la figure 3.6 correspond à un système à deux niveaux idéal, sans processus de déphasage supplémentaires, alors que l'on observe ici que le couplage supplémentaire à la cavité entraîne une forte modification des oscillations de Rabi, en créant d'abord un amortissement fort ( $\lambda_c/\lambda_g=1$ , courbe en noir) puis une réapparition des oscillations ( $\lambda_c/\lambda_g=2$ , courbe en bleu). En augmentant le couplage à la cavité, l'amplitude de l'oscillation diminue et leur pulsation augmente.

Ces deux simulations nous montrent que l'ajout de la cavité a un effet non négligeable sur les oscillations de Rabi. Les états propres du système  $\alpha$  et  $\beta$  ont pour effet de coupler les modes du guide et de la cavité par l'intermédiaire du système à deux niveaux. Ces simulations ne reproduisent cependant pas le comportement observé expérimentalement. L'étape suivante consistera à introduire la durée de vie  $\gamma_b$  du système à deux niveaux, ainsi que les temps de vie des photons  $\gamma_g$  et  $\gamma_c$  dans les modes du guide et de la cavité. On espère alors se rapprocher du comportement expérimental.

## 3.7 Commentaires et Conclusion

### 3.7.1 Environnement électrostatique et excitation résonante

Les expériences sous excitation résonante qui ont été présentées dans ce chapitre sont soumises à la forte influence de l'environnement électrostatique des boîtes. Des défauts présents localement dans la couche de mouillage peuvent piéger des charges (trous ou électrons). Ces charges piégées influencent les boîtes de plusieurs façons :

- Lorsque les défauts sont à proximité de la boîte étudiée, les charges piégées peuvent passer par effet tunnel dans celle-ci [116]. La boîte comporte alors une charge résiduelle et il n'est pas possible d'observer la luminescence résonante d'un

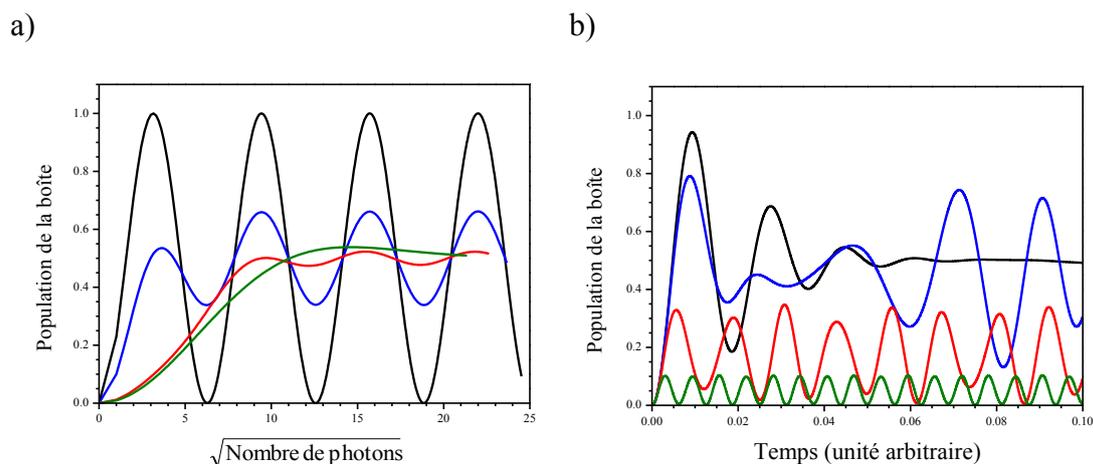


FIGURE 3.26 – Simulation des oscillations de Rabi pour un couplage au guide  $\lambda_g = 50$ . a) Pour  $T = 0.01$ , oscillations de Rabi en fonction du nombre de photons dans le guide et pour  $\lambda_c/\lambda_g = 0$  (noir), 3 (bleu), 5 (rouge) et 10 (vert) b) Oscillation de Rabi en fonction du temps pour un nombre de photons fixé à  $N = 10$  et  $\lambda_c/\lambda_g = 1$  (noir), 2 (bleu), 5 (rouge) et 10 (vert).

exciton neutre. En revanche, l'exciton chargé pourra être observé sous excitation résonante.

- Les charges induisent un champ local, modifiant l'énergie de la transition optique. Comme les pièges ne sont pas très profonds, les charges peuvent être évacuées, et se piéger sur un autre défaut. Ces fluctuations de charge induisent une variation du niveau pendant les mesures et introduisent un élargissement de la raie d'émission [104, 117, 118]. Ceci diminue le temps de cohérence mesuré par spectroscopie à transformée de Fourier, point qui sera commenté en fin de chapitre 4.

Pour remédier aux problèmes liées aux charges fluctuantes, il faut pouvoir les contrôler. Il a été montré [116] que l'ajout d'un laser non-résonnant permet d'agir sur la luminescence résonante. Nous avons également observé cet effet au moyen d'un laser He-Ne à très faible puissance (pW). Dans les échantillons étudiés, une grande majorité de boîtes ne présentaient pas de luminescence résonante. Pour certaines d'entre elles, l'ajout d'une excitation de quelques picowatt hors résonance permet de réactiver la luminescence résonante (voir figure 3.27 a)). En effet, le laser additionnel apporte dans le système des charges supplémentaires. Ces charges ont une plus grande probabilité de relaxer dans la boîte, si elles sont complémentaires de celles déjà présentes (i.e. un trou si un électron est piégé, ou le contraire). La nouvelle charge se recombine alors radiativement avec la charge excédentaire, laissant la boîte vide de charge. Ainsi, le laser résonant peut créer une paire électron-trou à l'énergie de la transition optique de l'exciton neutre. Comme le laser a un taux de répétition de 12,2 ns et que le temps

caractéristique du passage par effet tunnel vers la boîte d'une charge piégée à proximité est de l'ordre de la milliseconde [116], la boîte est toujours neutre et on retrouve le signal de luminescence. (figure 3.27 b)).

Le laser He-Ne supplémentaire permet également dans certains cas d'augmenter le signal de luminescence observé [21] (p. 184). Nous avons remarqué qu'il modifie les oscillations de Rabi. En règle générale, la présence du laser He-Ne modifie la période des oscillations de Rabi. Pour certaines boîtes des échantillons S2 et S3, nous avons également observé qu'il modifie la forme des oscillations (3.27 c). Il s'agit probablement là aussi d'un effet de charges environnantes. En effet, ces échantillons contiennent des miroirs de Bragg d'AlGaAs/GaAs. L'aluminium dans la structure à miroirs de Bragg est un élément connu par les épitaxieurs pour créer des porteurs libres dans le matériau.

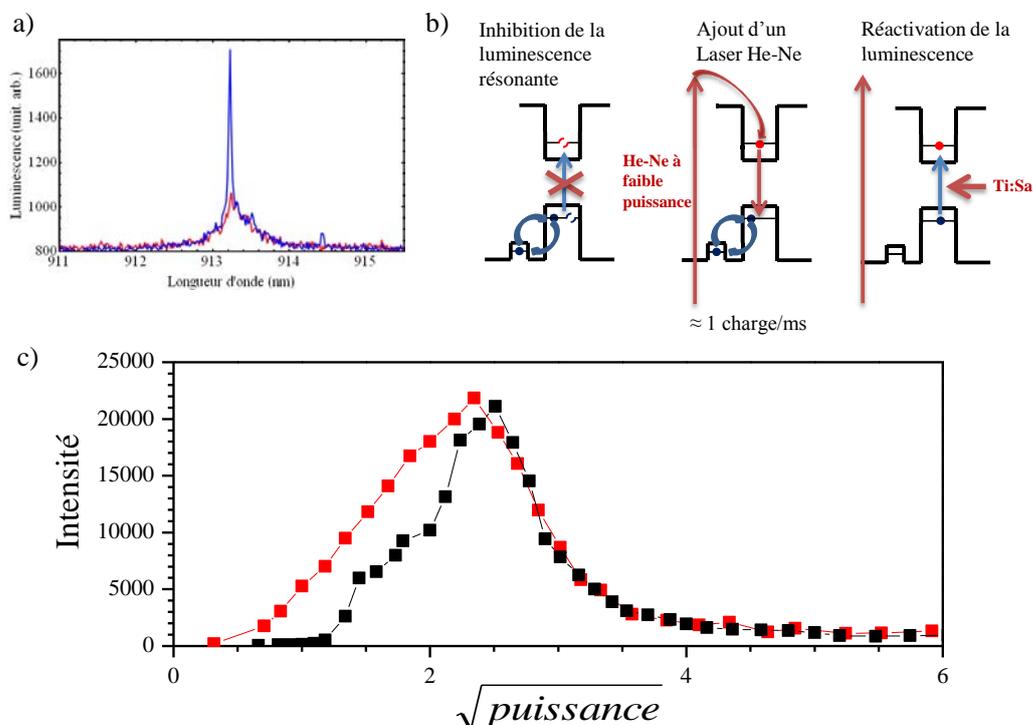


FIGURE 3.27 – a) Effet de l'ajout d'un laser HeNe sur la luminescence résonante. En rouge, acquisition sans HeNe, la luminescence est bloquée. En bleu, acquisition avec HeNe, la luminescence est réactivée. b) Schéma de l'effet d'une charge piégée à proximité d'une boîte : la charge peut être capturée par la boîte par effet tunnel, modifiant l'énergie de la transition optique. Un laser HeNe à faible puissance permet d'ajouter une charge dans la boîte qui se recombine avec la charge excédentaire. c) Effet de l'HeNe sur les oscillations de Rabi. En noir, l'oscillation de Rabi est enregistrée sans HeNe. En rouge, L'ajout d'un laser HeNe à très faible puissance ( $\sim pW$ ) permet de retrouver une oscillation habituelle.

### 3.7.2 Nature de l'excitation électronique

Dans ce chapitre, nous avons parlé d'excitons neutres et chargés. La nature de la transition optique dans les deux cas est la même : une paire électron-trou est ajoutée au système initial que ce soit une boîte vide ou contenant une charge excédentaire. Cependant, nous avons constaté que le temps de cohérence mesuré pour un exciton chargé est plus élevé que pour un exciton neutre. Cette différence est notamment pertinente lorsque l'on parle du rapport  $T_2/2T_1$ , qui caractérise la cohérence par rapport à sa limite radiative. Pour un exciton neutre, ce rapport vaut en moyenne 0,2, à l'exception notable de la boîte S3A. Pour un exciton chargé en revanche, ce rapport a toujours été mesuré supérieur à 0,2 avec une valeur moyenne à 0,5. Les exemples des deux boîtes chargées présentées dans ce chapitre se rapprochant même de la limite radiative.

A l'heure actuelle, nous n'avons pas d'explication qui permette de rendre compte de ces résultats. Cependant, une des raisons possibles pourrait être la différence entre les états électroniques des deux excitons. Dans le cas d'un exciton chargé possédant un électron excédentaire, le principe d'exclusion de Pauli impose que les deux électrons aient un spin opposé. L'état peut alors s'écrire  $(|\uparrow\rangle|\downarrow\rangle + |\downarrow\rangle|\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$ . Au contraire, pour un exciton neutre, le spin du trou et de l'électron ne sont fixés que par l'excitation. L'interaction avec l'environnement peut changer le spin d'une des charges. Dans le cas de l'exciton neutre, ceci modifie l'état excitonique qui devient "noir" car la transition optique n'est plus autorisée par les règles de sélection. Pour l'exciton chargé négativement, par exemple, si le spin du trou change, la transition sera toujours permise. On peut imaginer qu'un tel système, alors moins sensible à l'environnement, préserve plus efficacement la cohérence.

### 3.7.3 Commentaire sur la variation de la durée de vie et la nature de l'exciton

Dans ce chapitre, nous avons expliqué la diminution de la durée de vie radiative par le couplage résonant au guide. On peut également évoquer la présence des états noirs de l'exciton, qui constituent un réservoir pour le peuplement des états brillants. En effet, lors d'une excitation non résonante, il est possible de peupler les états noirs de l'exciton lors de la relaxation non radiative des porteurs de charges. Cela a été observé par plusieurs groupes, qui ont mesuré une augmentation de la durée de vie avec la température lors d'une excitation non-résonante [123, 145]. Ils mettent en avant un peuplement des états noirs après relaxation des excitons brillants sur ce niveau par émission de phonons, avec un retournement du spin de l'électron ou du trou. Ces états sont optiquement interdits et le temps caractéristique à partir duquel ils redeviennent brillants, par relaxation du spin d'une des deux charges est très long ( $\mu\text{s}$ ) comparé aux temps caractéristiques de nos mesures. Lors d'une excitation résonante au contraire, le peuplement des états noirs n'est que peu probable en raison de la conservation nécessaire du spin et de l'énergie. La différence entre ces deux régimes semble expliquer

raisonnablement la différence de temps de vie radiatif observé. Cependant, cette variation a été mise en évidence sur des excitons chargés, qui ne possèdent pas d'états noirs. Ce phénomène ne peut donc être responsable de la diminution de la durée de vie sous une excitation résonante.

### 3.7.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons vu que l'excitation résonante d'une boîte quantique permet d'augmenter le temps de cohérence de la transition. Cette augmentation est importante si l'on souhaite réaliser des expériences d'optique quantique, pour lesquelles les photons doivent être indiscernables. L'excitation résonante des boîtes quantiques permet d'entrer dans le régime des oscillations de Rabi, régime également intéressant, car il permet d'initialiser un qubit à partir des états de l'exciton. Cependant, nous avons mis en évidence que le couplage de la boîte aux phonons LA du GaAs et au mode optique du guide d'onde est fortement modifié par l'impulsion d'excitation. L'excitation résonante induit donc une perte de cohérence supplémentaire ainsi qu'une diminution du signal collecté. Ces deux phénomènes imposent de travailler à basse puissance. Une solution possible pour créer un exciton en limitant les phénomènes de déphasage induits par la puissance d'excitation serait d'envoyer  $N$  impulsions  $\pi/N$ . La puissance totale serait alors diminuée, car évoluant en  $\Omega_R^2$ .

Nous avons également vu que les nouvelles générations d'échantillons, S2 et S3, avec miroirs de Bragg, compliquent l'interaction entre le système et la lumière, car celui-ci se trouve alors en présence de modes privilégiés qui sont en compétition. Pour décrire le système total, nous avons développé l'ébauche d'une approche quantique, qui permet de mettre en évidence deux phénomènes :

- En introduisant des énergies complexes, il est possible de modéliser la durée de vie de la boîte et du mode guidé. On est alors capable de retrouver les oscillations de Rabi, avec une diminution de l'intensité de luminescence. Ce modèle montre que cette diminution est liée à la stimulation du système à deux niveaux par l'impulsion d'excitation, ce qui est cohérent avec le modèle phénoménologique que nous avons développé.
- En ajoutant la cavité, on met en évidence des états couplés cavité-guide. Ces états modifient le comportement du système à deux niveaux sous excitation résonante. Les calculs que nous avons menés, ne prennent pas en compte la durée de vie et ne peuvent reproduire l'évolution du système. Ces modélisations méritent certainement d'être poursuivies afin d'aboutir à un modèle microscopique complet rendant compte des observations expérimentales.

# Chapitre 4

## Photons uniques indiscernables à la demande

Ce chapitre est consacré à la mesure d'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique. L'indiscernabilité est liée aux propriétés de cohérence du système à deux niveaux et plus particulièrement au rapport entre son temps de vie  $T_1$  et son temps de cohérence  $T_2$ . Du fait du couplage entre une boîte quantique et son environnement, le degré d'indiscernabilité des photons émis est généralement assez faible. Deux approches principales sont utilisées pour l'augmenter : l'utilisation de microcavités permettant de diminuer  $T_1$  par effet Purcell et l'excitation à la résonance de la transition optique. Les premières mesures d'indiscernabilité ont été réalisées au début des années 2000 en introduisant les boîtes quantiques dans des microcavités [146]. L'avantage de ces structures est l'augmentation de l'efficacité de collection du signal de luminescence [87]. Cependant l'excitation non résonante limite le degré d'indiscernabilité mesuré à 0,8 en raison de l'apport de charges dans l'environnement induisant de la diffusion spectrale. L'autre approche consiste à étudier les boîtes quantiques à la résonance, permettant le peuplement direct de l'état excité. Récemment deux régimes d'excitation ont été étudiés. D'abord, en régime d'excitation continue, il a été montré que les photons émis présentent un grand degré d'indiscernabilité de 0,9 [88] en régime de couplage fort et qu'à faible puissance d'excitation, la cohérence est régie par la cohérence du laser ce qui permet d'obtenir un degré d'indiscernabilité supérieur à 1 [111, 109]. Cependant sous excitation continue, il n'est pas possible d'obtenir des photons uniques à la demande, et pour cela il faut exciter les boîtes en régime impulsionnel, régime que nous avons utilisé pour la réalisation des mesures d'indiscernabilité. Pendant la réalisation de ce travail, He *et al.* ont montré qu'il était possible d'obtenir des photons indiscernables à la demande avec un degré de 0,95 [147]. Pour obtenir ces résultats ils ont utilisé une géométrie en polarisation croisée permettant de s'affranchir de la lumière diffusée du laser, et ont sélectionné spectralement la luminescence grâce à une cavité Fabry-Perrot. Dans les travaux qui sont présentés ici, le signal de luminescence n'est ni sélectionné en polarisation ni filtré spectralement. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent,

la géométrie guidée permet de s'affranchir de la diffusion du laser.

Comme les boîtes émettent des photons uniques, une approche quantique du champ est nécessaire pour appréhender et comprendre cette expérience. Nous introduirons d'abord les fonctions de corrélation du premier et second ordre, permettant respectivement les mesures de cohérence et d'indiscernabilité. Nous verrons ensuite que l'on peut modéliser les interactions entre une boîte et son environnement, afin de les prendre en compte dans le calcul des fonctions de corrélations. Nous verrons enfin les résultats expérimentaux de la mesure d'indiscernabilité.

## 4.1 Fonction de corrélation du premier ordre

### 4.1.1 Description par un champ classique

Les propriétés de cohérence de la lumière peuvent être sondées par des expériences d'interférences. Dans de telles expériences, la lumière prise en deux points spatialement ou temporellement séparés, est superposée : si des interférences sont observées, la lumière est dite cohérente. La fonction caractérisant cette cohérence est appelée fonction de corrélation du champ électrique du premier ordre et est définie par l'expression :

$$g^{(1)}(r_1, t_1, r_2, t_2) = \frac{\langle E^*(r_1, t_1) E(r_2, t_2) \rangle}{(\langle |E(r_1, t_1)|^2 \rangle \langle |E(r_2, t_2)|^2 \rangle)^{1/2}} \quad (4.1)$$

où les  $\langle \rangle$  symbolisent des moyennes statistiques, et  $E = E_0 e^{i(\vec{q} \cdot \vec{r} - \omega t)}$  est l'amplitude du champ complexe, à la position  $r_{1,2}$  et au temps  $t_{1,2}$ . Cette expression est communément utilisée pour calculer les figures d'interférences. Dans le cas d'un interféromètre de Mach-Zehnder, la lumière qui parcourt les deux bras interfère sur une lame semi-réfléchissante et  $r_1 = r_2$ . La fonction de corrélation du champ devient donc :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t + \tau) E(t) \rangle}{\langle E(t) E(t) \rangle} \quad (4.2)$$

où  $\tau = t_1 - t_2 + (r_2 - r_1)/c$  représente le délai dû à la différence de marche entre les deux bras de l'interféromètre. Dans le cas d'une onde monochromatique de pulsation  $\omega_0$ , le calcul des interférences donne une intensité :

$$\mathcal{I}(\tau, \omega_0) = 2I_0 [1 + |g^{(1)}(\tau)| \cos \phi(\tau)] \quad (4.3)$$

où  $I_0 = \langle |E|^2 \rangle$  est l'intensité incidente envoyée dans l'interféromètre.  $\tau$  représente ici le retard entre les deux voies de l'interféromètre et  $\phi(\tau) = \arg(g^{(1)}(\tau)) = \omega_0 \tau$  est la différence de phase. On observe ainsi, comme pour une expérience avec un champ classique des franges d'interférences de période  $2\pi/\omega_0$ . La visibilité (ou contraste) des interférences est alors donnée par :

$$V(\tau) = \frac{\mathcal{I}_{max}(\tau) - \mathcal{I}_{min}(\tau)}{\mathcal{I}_{max}(\tau) + \mathcal{I}_{min}(\tau)} = |g^{(1)}(\tau)| \quad (4.4)$$

Le contraste des franges d'interférences donnera alors directement la valeur de la fonction de corrélation d'ordre 1.

### Calcul exact de $|g^{(1)}(\tau)|$ pour une raie de largeur finie

Dans le cas d'une raie homogène d'émission, comme dans le cas d'une boîte quantique, la distribution spectrale est une lorentzienne centrée sur  $\omega_0$  et de largeur à mi-hauteur  $\Gamma$  :

$$\mathcal{P}(\omega) = \frac{\frac{2}{\pi\Gamma}}{1 + \left[\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}\right]^2} \quad (4.5)$$

Le calcul de l'intensité s'obtient en intégrant sur l'ensemble du spectre, et l'expression devient :

$$\begin{aligned} \mathcal{I} &= \int_0^\infty \mathcal{I}(\omega, \tau) \mathcal{P}(\omega) d\omega \\ &= 2I_0 \left[ \int_0^\infty \mathcal{P}(\omega) d\omega + \int_0^\infty \cos(\omega\tau) \mathcal{P}(\omega) d\omega \right] \end{aligned} \quad (4.6)$$

Afin de calculer cette intégrale, il faut la prolonger par continuité à  $-\infty$ . Il est possible de faire cette approximation dans le cas où :

$$\begin{cases} \omega_0 > 0 \\ \omega \gg \Gamma \end{cases}$$

En effet, sous cette condition, la partie intégrée entre 0 et  $-\infty$  est négligeable devant le reste de l'intégrale. L'équation 4.6 devient :

$$\begin{aligned} \mathcal{I} &= 2I_0 \left[ \int_{-\infty}^\infty \mathcal{P}(\omega) d\omega + \int_{-\infty}^\infty \cos(\omega\tau) \mathcal{P}(\omega) d\omega \right] \\ &= 2I_0 \left[ 1 + J(\tau) \right] \end{aligned} \quad (4.7)$$

où :

$$J(\tau) = \mathcal{R}e \left( \frac{2}{\pi\Gamma} \int_{\omega \in \mathbb{C}} \frac{e^{i\omega\tau}}{1 + \left[\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}\right]^2} d\omega \right)$$

On reconnaît ici la transformée de Fourier d'une fonction lorentzienne. Il est alors possible de calculer cette intégrale par le théorème des résidus. La fonction complexe :

$$f(\omega) = \frac{e^{i\omega\tau}}{1 + \left[\frac{2(\omega-\omega_0)}{\Gamma}\right]^2}$$

possède deux pôles en  $\omega_{\pm} = \omega_0 \pm i\frac{\Gamma}{2}$ . Pour des raisons de convergence de l'intégrale, il faut choisir le pôle  $\omega_+$  (respectivement  $\omega_-$ ) quand on considère les retards  $\tau$  positifs

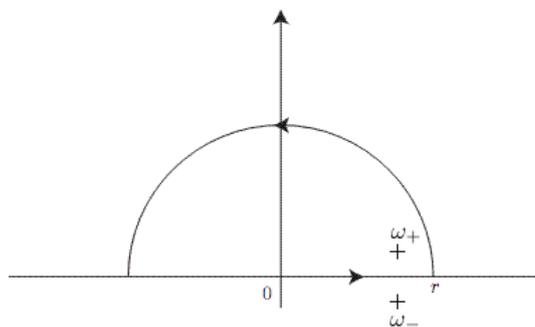


FIGURE 4.1 – Chemin pour le calcul de l'intégrale  $J$ , pour  $\tau$  positif, par le théorème des résidus.

(resp. négatifs) et boucler dans le sens trigonométrique (resp. horaire) comme indiqué en figure 4.1.

Le théorème des résidus pour les temps positifs donne alors :

$$\begin{aligned}
 J &= \frac{2}{\pi\Gamma} 2i\pi \operatorname{Res} [f(\omega)]_{\omega=\omega_+} \\
 &= \frac{2}{\pi\Gamma} 2i\pi \operatorname{Res} \left[ \frac{e^{i\omega\tau}}{1 + \left[ \frac{2(\omega - \omega_0)}{\Gamma} \right]^2} \right]_{\omega=\omega_0 + i\frac{\Gamma}{2}} \\
 &= e^{-\frac{\Gamma\tau}{2}} e^{i\omega_0\tau}
 \end{aligned} \tag{4.8}$$

On en déduit finalement que :

$$\begin{aligned}
 I &= 2I_0 \left[ 1 + e^{-\frac{\Gamma|\tau|}{2}} \cos(\omega_0 |\tau|) \right] \\
 &= 2I_0 \left[ 1 + e^{-\frac{\Gamma|\delta|}{2c}} \cos\left(\frac{2\pi|\delta|}{\lambda_0}\right) \right]
 \end{aligned} \tag{4.9}$$

où  $\delta$  est la différence de marche entre les deux chemins de l'interféromètre,  $c$  la vitesse de la lumière dans l'air et  $\lambda_0$  la longueur d'onde centrale de la luminescence. Nous prenons ici la valeur absolue du retard pour tenir compte des valeurs positives ou négatives de celui-ci. On retrouve ainsi que la transformée de Fourier d'une lorentzienne est une exponentielle décroissante, avec un temps caractéristique  $T_2 = \frac{2}{\Gamma}$ , où  $T_2$  représente le temps de cohérence de la source. La fonction de corrélation d'ordre 1 peut donc se déduire en identifiant les équations 4.3 et 4.9, et on trouve :

$$|g^{(1)}(\tau)| = e^{-\frac{|\tau|}{T_2}} \tag{4.10}$$

Cette relation de transformée de Fourier entre la distribution spectrale et le contraste de l'interférogramme est généralisable à toute forme de raie. Ainsi, un profil spectral gaussien variera comme une gaussienne dans le domaine temporel. Cette généralisation est formalisée par le théorème de Wiener-Khinchine [91] :

$$\mathcal{P}(\omega) = \frac{1}{\pi} \operatorname{Re} \left[ \int_0^\infty g^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \right] \tag{4.11}$$

La mesure de  $g^{(1)}(\tau)$  par transformée de Fourier nous permet donc de mesurer le temps de cohérence d'une source lumineuse.

### 4.1.2 Description quantique

Le calcul effectué précédemment ne tient pas compte du caractère quantique de la lumière émise par une boîte quantique. En effet, la luminescence est composée de photons uniques qu'il est nécessaire de décrire en seconde quantification, avec les opérateurs création ( $\hat{a}^\dagger$ ) et annihilation ( $\hat{a}$ ) du champ. Le champ quantique s'écrit comme [91] :

$$\hat{E}(r, t) = \hat{E}^+(r, t) + \hat{E}^-(r, t) \quad (4.12)$$

et les opérateurs du champ sont définis par rapport aux opérateurs création et annihilation par [148] :

$$\begin{aligned} \hat{E}^+(r, t) &= i \sum_k \sqrt{\frac{\hbar\omega_k}{16\pi^3\epsilon_0}} \epsilon_k e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \hat{a}_k \\ \hat{E}^-(r, t) &= -i \sum_k \sqrt{\frac{\hbar\omega_k}{16\pi^3\epsilon_0}} \epsilon_k e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} \hat{a}_k^\dagger \end{aligned} \quad (4.13)$$

où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde,  $\omega_k$  la pulsation et  $\epsilon_k$  la polarisation du mode  $k$ . La fonction de corrélation quantique du premier ordre s'écrit alors [91] :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle \hat{E}^-(t+\tau) \hat{E}^+(t) \rangle}{\langle \hat{E}^-(t) \hat{E}^+(t) \rangle} \quad (4.14)$$

En faisant l'hypothèse que les photons sont émis dans un unique mode, la fonction de corrélation s'écrit en fonction des opérateurs création et annihilation :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t+\tau) \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger(t) \hat{a}(t) \rangle} \quad (4.15)$$

Deux états quantiques du champ nous intéressent. Il s'agit des états nombres et des états cohérents. Les premiers sont une bonne approximation des états émis par la boîte quantique, et sont définis par un état  $|n\rangle$ , à  $n$  photons, suivant les relations :

$$\begin{aligned} \hat{a}^\dagger |n\rangle &= \sqrt{n+1} |n+1\rangle \\ \hat{a} |n\rangle &= \sqrt{n} |n-1\rangle \end{aligned} \quad (4.16)$$

Les états cohérents sont définis par le nombre moyen de photons  $|\alpha|^2$  où  $\alpha$  est un nombre complexe et l'état  $|\alpha\rangle$  vérifie :

$$\begin{aligned} |\alpha\rangle &= e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \exp(\alpha \hat{a}^\dagger) |v\rangle \\ \hat{a} |\alpha\rangle &= \alpha |\alpha\rangle \end{aligned} \quad (4.17)$$

De plus, il est possible de montrer [91] que tout état pur monomode (état nombre, état cohérent ou une superposition de ces états) est dit cohérent du premier ordre, et  $g^{(1)}(\tau) = 1$ . Dans le cas d'une source telle qu'une boîte quantique, le temps  $T_2$  relié à la fonction de corrélation caractérise la longueur du train d'onde du photon émis. Dans le cas de photons uniques, il est impossible de mesurer cette longueur avec un seul paquet d'onde. Cependant, le système étudié est excité périodiquement et la mesure de  $T_2$  devient accessible au travers d'une mesure statistique.

## 4.2 Fonction de corrélation du second ordre

### 4.2.1 Description classique du champ

En optique classique, la fonction de corrélation du second ordre permet la mesure des fluctuations d'intensité de la lumière étudiée. Elle s'écrit :

$$g^{(2)}(r_1, r_2, t_1, t_2) = \frac{\langle I(r_1, t_1)I(r_2, t_2) \rangle}{\langle I(r_1, t_1) \rangle \langle I(r_2, t_2) \rangle} \quad (4.18)$$

$\langle \rangle$  symbolise toujours la moyenne statistique,  $I$  est l'intensité du champ considéré au point de mesure situé en  $r_1$  (resp.  $r_2$ ) au temps  $t_1$  (resp.  $t_2$ ). En introduisant  $\tau = t_2 - t_1 + (r_1 - r_2)/c$ , on montre que cette expression est équivalente à la mesure en un unique point [91] :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t + \tau) \rangle}{\langle I \rangle^2} \quad (4.19)$$

Avec un champ classique, la relation de Cauchy  $\langle I \rangle^2 < \langle I^2 \rangle$  indique que la fonction de corrélation vérifie les inégalités :

$$g^{(2)}(0) \geq 1$$

$$g^{(2)}(0) \geq g^{(2)}(\tau)$$

et ne présente a priori pas de limite supérieure. Dans le cas d'une source émettant de la lumière dont l'intensité ne présenterait aucune fluctuation (par exemple pour un laser idéal), on montre que :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 \quad (4.20)$$

et ne dépend pas du retard  $\tau$ . En revanche, pour une source chaotique ou thermique, on montre que :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= 1 + |g^{(1)}(\tau)|^2 \text{ et,} \\ g^{(2)}(0) &= 2 \end{aligned} \quad (4.21)$$

## 4.2.2 Description quantique du champ

La description classique du champ ne permet pas de rendre compte de l'émission d'une boîte quantique. Il faut donc écrire la fonction de corrélation d'ordre 2 avec des opérateurs quantiques. Si pour la fonction de corrélation d'ordre 1 les résultats étaient similaires, la description quantique de la fonction de corrélation d'ordre 2 montre des différences avec sa version classique. L'expression générale de la fonction de corrélation du deuxième ordre s'écrit :

$$g^{(2)}(r_1, r_2, t_1, t_2) = \frac{\langle \hat{E}^-(r_1, t_1) \hat{E}^-(r_2, t_2) \hat{E}^+(r_2, t_2) \hat{E}^+(r_1, t_1) \rangle}{\langle \hat{E}^-(r_1, t_1) \hat{E}^+(r_1, t_1) \rangle \langle \hat{E}^-(r_2, t_2) \hat{E}^+(r_2, t_2) \rangle} \quad (4.22)$$

où  $\hat{E}$  représente l'opérateur du champ électrique. L'interprétation générale de cette formule est similaire à la formule classique. La fonction de corrélation du deuxième ordre mesure la probabilité de détecter un photon à  $t_2$  en  $r_2$  sachant que l'on en a détecté un à  $t_1$  en  $r_1$ . Elle est donc sensible aux fluctuations d'intensité de la lumière considérée. Cependant, deux différences majeures apparaissent :

- les opérateurs ne commutent pas, sauf dans certains cas particuliers, et :

$$g^{(2)}(\tau) \neq \frac{\langle \hat{n}_1(t) \hat{n}_2(t + \tau) \rangle}{\langle \hat{n}_1 \rangle \langle \hat{n}_2 \rangle}$$

Cette propriété est importante pour le calcul des interférences à deux photons dans une expérience de Hong-Ou-Mandel, comme nous le verrons plus loin dans ce chapitre.

- il est possible d'avoir :

$$1 > g^{(2)}(0) \geq 0$$

qui traduit un comportement purement quantique. On parle alors d'états non-classiques de la lumière.

Ces propriétés quantiques peuvent être mises en avant dans le cas simple d'une source lumineuse monomode, de train d'onde infini. La fonction de corrélation se simplifie alors et devient :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} \rangle}{\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle^2} \quad (4.23)$$

où  $\hat{a}^\dagger$  et  $\hat{a}$  sont les opérateurs création et annihilation du mode considéré. En tenant compte des relations de commutation de ces opérateurs, on trouve :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= \frac{\langle \hat{a}^\dagger (\hat{a} \hat{a}^\dagger - 1) \hat{a} \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \\ &= \frac{\langle \hat{n} (\hat{n} - 1) \rangle}{\langle \hat{n} \rangle^2} \end{aligned} \quad (4.24)$$

Cette expression révèle le caractère quantique de la mesure. Lorsqu'un photon est détecté, le nombre de photons dans le système passe alors de  $n$  à  $n - 1$ . En particulier, dans le cas d'un état nombre  $|n\rangle$ , l'expression devient :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau) &= (n-1)/n & \text{si } n \geq 2 \\ &= 0 & \text{si } n = 0 \text{ ou } 1 \end{aligned} \quad (4.25)$$

Ainsi, pour une source de photons uniques, la fonction de corrélation s'annule à retard nul.

### 4.2.3 Expérience de Hanbury-Brown et Twiss

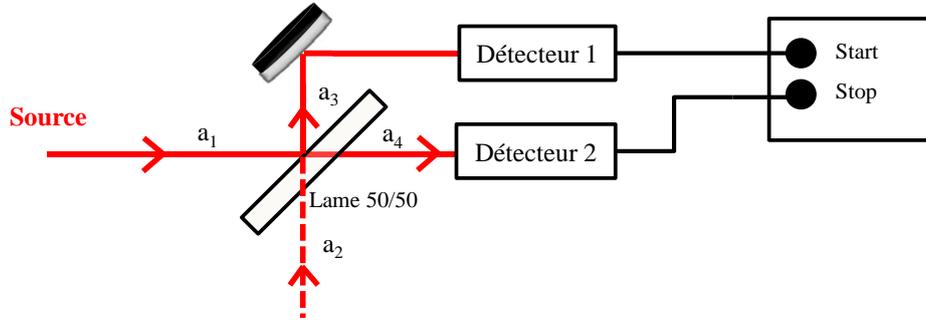


FIGURE 4.2 – Schéma du dispositif de Hanbury-Brown and Twiss (HBT).

L'expérience historique permettant de mesurer les corrélations du deuxième ordre a été proposée par Hanbury-Brown et Twiss [23]. Dans cette expérience décrite figure 4.2, les photons issus de la source arrivent sur une lame semi-réfléchissante à partir d'un mode  $\hat{a}_1$  et sont réfléchis ou transmis vers les modes  $\hat{a}_3$  et  $\hat{a}_4$  suivant la relation :

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_3^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -r & t \\ t & r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_2^\dagger \end{bmatrix} \quad (4.26)$$

où  $r$  et  $t$  sont les coefficients de réflexion et de transmission en amplitude du champ de la lame. Cette relation étant définie à une phase près,  $r$  et  $t$  peuvent être pris réels. Les opérateurs d'annihilation correspondants, suivent la même relation avec des opérateurs hermitiques conjugués. Les particules en entrée sont des bosons indépendants, ils vérifient donc les relations de commutation :

$$[\hat{a}_1, \hat{a}_1^\dagger] = [\hat{a}_2, \hat{a}_2^\dagger] = 1 \text{ et } [\hat{a}_1, \hat{a}_2^\dagger] = [\hat{a}_2, \hat{a}_1^\dagger] = 0$$

$n_1$	$n_3$	$n_4$	$\langle n_3 \rangle = \langle n_4 \rangle$	$\langle n_3 n_4 \rangle$	$g^{(2)}(\tau)$
1	$\begin{cases} 1 \\ 0 \end{cases}$	$\begin{cases} 0 \\ 1 \end{cases}$	1/2	0	0
2	$\begin{cases} 2 \\ 1 \\ 1 \\ 0 \end{cases}$	$\begin{cases} 0 \\ 1 \\ 1 \\ 2 \end{cases}$	1	1/2	1/2
3	-	-	3/2	3/2	2/3
4	-	-	2	3	3/4

FIGURE 4.3 – Tableau du nombre de photons moyen et des corrélations du deuxième ordre pour des petites valeurs de  $n$ .

Les relations sur les opérateurs en sortie doivent suivre les mêmes relations :

$$[\hat{a}_3, \hat{a}_3^\dagger] = [\hat{a}_4, \hat{a}_4^\dagger] = 1 \text{ et } [\hat{a}_3, \hat{a}_4^\dagger] = [\hat{a}_4, \hat{a}_3^\dagger] = 0$$

Ces relations de commutation conduisent à la relation attendue entre les coefficients de réflexion et transmission de la lame séparatrice :

$$|r|^2 + |t|^2 = r^2 + t^2 = 1$$

Dans le cas d'une lame parfaitement 50/50,  $r = t = 1/\sqrt{2}$ , si  $n_1$  photons arrivent sur la lame,  $n_3$  sont réfléchis et  $n_4$  sont transmis, et  $\langle n_3 \rangle = \langle n_4 \rangle = n_1/2$ .

Lorsque que l'état à l'entrée est un état nombre, la mesure de corrélation donne :

$$g_{34}^{(2)} = \frac{\langle \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_4 \hat{a}_3 \rangle}{\langle \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_3 \rangle \langle \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_4 \rangle} = \frac{\langle \hat{n}_3 \hat{n}_4 \rangle}{\langle \hat{n}_3 \rangle \langle \hat{n}_4 \rangle} = \frac{n_1(n_1 - 1)}{n_1^2} \quad (4.27)$$

car lorsqu'un photon est détecté sur une des voies, il reste alors  $n - 1$  photons dans le système (voir équation 4.24). La mesure de HBT donne alors la fonction de corrélation suivante :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \frac{1}{n_1} \quad (4.28)$$

Le tableau 4.3 donne les différentes possibilités pour un faible nombre de photons. Ainsi pour une source de photons uniques, aucune corrélation n'est mesurée. Ce résultat particulier, peut se retrouver en calculant l'état de sortie de la lame lorsqu'un unique photon est envoyé dans la voie 1. Le système effectue alors l'opération suivante :

$$|1_1\rangle|0_2\rangle \rightarrow \left(-r\hat{a}_3^\dagger + t\hat{a}_4^\dagger\right) |vide\rangle = -R|1_3\rangle|0_4\rangle + T|0_3\rangle|1_4\rangle$$

Et si l'on réalise une mesure, aucune corrélation entre les deux voies ne peut être détectée.

Les différentes sources de lumière ne sont pas toutes décrites par des états nombres. Ainsi, une source cohérente (laser) ou une source chaotique (ou thermique) conduisent au même résultat que celui attendu classiquement. Certaines sources quantiques permettent également d'émettre des états dits comprimés ("squeezed") dont les fluctuations en amplitude ou en phase sont inférieures à celle du vide. Théoriquement, ces états peuvent présenter des corrélations du deuxième ordre aussi grandes que l'on veut (voir figure 4.4).

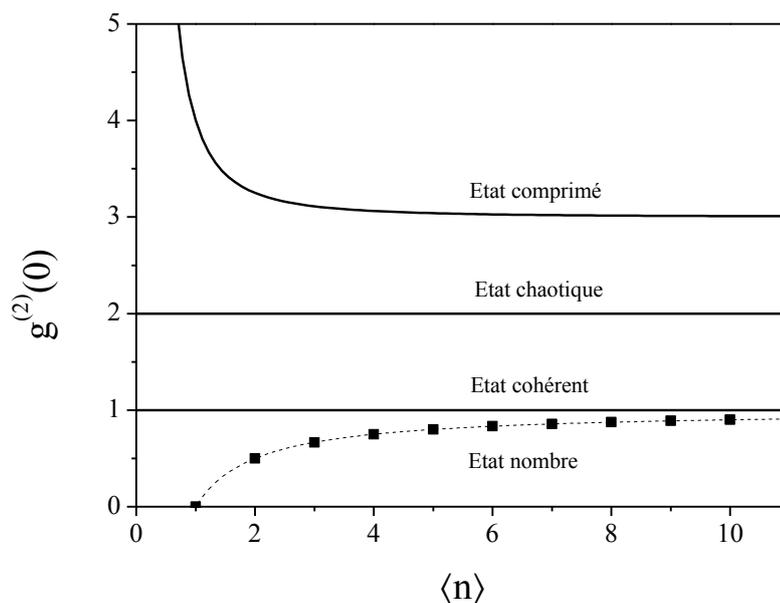


FIGURE 4.4 – Corrélation du deuxième ordre pour des états monomodes en fonction du nombre de photons dans le mode.

## 4.3 Caractérisation d'une source de photons indiscernables

### 4.3.1 Corrélation du second ordre : interférences à 2 photons

Dans le cas d'une source de photons uniques, la fonction de corrélation du deuxième ordre permet également de caractériser l'indiscernabilité des photons émis. Deux photons sont dit indiscernables, s'ils ont même énergie, même polarisation et même profil spectral et temporel. Dans le cas d'une boîte quantique, cette propriété est reliée au temps de cohérence  $T_2$  et au temps de vie  $T_1$  de l'état excité. Lorsque le temps de cohérence est limité radiativement, i.e.  $T_2 = 2T_1$ , alors les photons émis sont indiscernables. L'indiscernabilité se mesure directement en faisant interférer deux

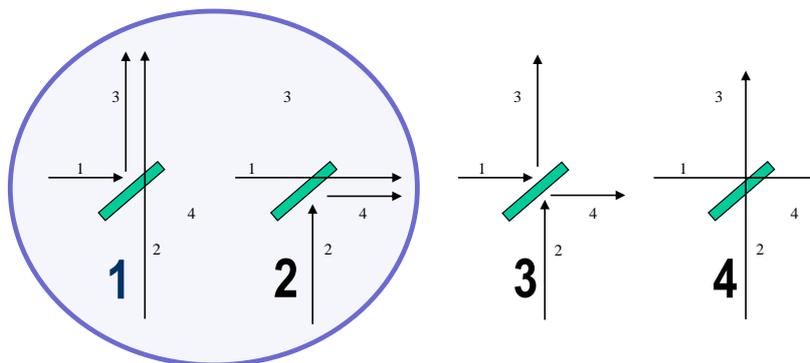


FIGURE 4.5 – Interférence à deux photons sur une lame semi-réfléchissante. Deux photons discernables auront quatre possibilités de sortie alors que pour deux photons indiscernables, seules les cas où les photons coalescent (1 et 2) sont possibles.

photons sur une lame 50/50 (figure 4.5). Dans le cas général, quatre cas de figure sont possibles. Mais lorsque les photons sont indiscernables, leur caractère bosonique fait qu'ils vont coalescer et emprunter la même sortie de la lame séparatrice. La mesure de la fonction de corrélation du deuxième ordre permet de caractériser ce que l'on appelle le degré d'indiscernabilité, défini par le rapport  $T_2/2T_1$ .

Considérons l'état initial  $|n_1 = 1\rangle|n_2 = 1\rangle$ , où les deux photons des voies 1 et 2 sont des états nombres et suivent deux des conditions d'indiscernabilité : même profil spectral et même polarisation. La fonction de corrélation d'ordre deux pour les sorties 3 et 4,  $g_{34}^{(2)}$ , telle qu'elle a été définie précédemment est proportionnelle à :

$$P_{34} \equiv \langle \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_4 \hat{a}_3 \rangle = \langle \hat{n}_3 \hat{n}_4 \rangle \quad (4.29)$$

où  $\hat{n}_3 = \hat{a}_3^\dagger \hat{a}_3$  et  $\hat{n}_4 = \hat{a}_4^\dagger \hat{a}_4$  sont les opérateurs nombres des voies 3 et 4. Ces opérateurs suivent les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \hat{n}_3 &= \left( -r\hat{a}_1^\dagger + t\hat{a}_2^\dagger \right) \left( -r\hat{a}_1 + t\hat{a}_2 \right) \\ &= r^2\hat{n}_1 + t^2\hat{n}_2 - rt \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right) \\ \hat{n}_4 &= r^2\hat{n}_2 + t^2\hat{n}_1 + rt \left( \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 + \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \right) \end{aligned} \quad (4.30)$$

où  $\hat{n}_1$  et  $\hat{n}_2$  sont les opérateurs nombre pour les voies 1 et 2, et, dans notre cas,  $n_1 = n_2 = 1$ . Nous pouvons déjà remarquer que  $n_3 + n_4 = n_1 + n_2$ , ce qui est attendu par la conservation de l'énergie, donc ici du nombre de photons.

On obtient donc :

$$\begin{aligned}
g_{34}^{(2)} \propto P_{34} &= \left( r^2 + t^2 - rt \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right) \right) \left( r^2 + t^2 + rt \left( \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 + \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \right) \right) \\
&= 1 - r^2 t^2 \left( \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 + \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \right)^2 \\
&= 1 - r^2 t^2 \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right)
\end{aligned} \tag{4.31}$$

En utilisant la relation de commutation  $\hat{a}\hat{a}^\dagger = \hat{a}^\dagger\hat{a} + 1$ , l'expression devient :

$$\begin{aligned}
P_{34} &= 1 - r^2 t^2 \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{n}_2(\hat{n}_1 + 1) + \hat{n}_1(\hat{n}_2 + 1) + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \right) \\
&= 1 - r^2 t^2 \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 + \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 \hat{a}_2^\dagger \hat{a}_1 + 4 \right)
\end{aligned} \tag{4.32}$$

Les deux termes contenant deux opérateurs annihilation s'appliquent sur le même mode et, appliqués à un état à un photon, donnent une contribution nulle.

Ainsi, on trouve :

$$P_{34} = 1 - 4r^2 t^2 \tag{4.33}$$

Si la lame séparatrice est 50/50, c'est-à-dire que  $r^2 = t^2 = 0,5$ , alors :

$$P_{34} = 0 \tag{4.34}$$

et aucune coïncidence ne peut être mesurée. On dit que les photons coalescent. Bien qu'arrivant par deux chemins différents, la nature de bosons indiscernables des photons fait qu'ils prennent la même voie de sortie de la lame.

*Remarque* : Pour un état cohérent (tel que celui d'un laser) :

$$|\beta\rangle = e^{-\frac{|\beta|^2}{2}} \exp(\beta \hat{a}^\dagger) |v\rangle$$

les termes que nous avons annulés précédemment ne sont plus nuls. Ainsi, si un même état cohérent  $|\beta\rangle$  arrive par les deux voies d'entrée sur la lame, on trouve :

$$\langle \beta_1 | \langle \beta_2 | \left( \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 \right) | \beta_1 \rangle | \beta_2 \rangle = \beta^4$$

en utilisant la relation  $\hat{a}|\beta\rangle = \beta|\beta\rangle$ . On montre alors que pour un tel état,  $P_{34} = 0$  à retard nul. En introduisant un déphasage entre les deux voies, on peut simuler une différence de marche entre les deux voies d'un interféromètre de Mach-Zehnder. Pour cela, un déphasage  $\phi$  entre les deux voies peut être introduit au moyen d'un opérateur de propagation :

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_3^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -r & t \\ t & r \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e^{i\phi} & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_2^\dagger \end{bmatrix} \tag{4.35}$$

On montre alors que pour un état cohérent, les corrélations varient entre 0 et 1, alors que pour un état nombre à 1 photon, les coïncidences restent nulles.

### 4.3.2 Expérience de Hong-Ou-Mandel

L'expérience décrite ci-dessus permet de mesurer l'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique, si deux photons parviennent en même temps sur une lame 50/50. Cette expérience a d'abord été réalisée par Hong, Ou et Mandel [24, 149] qui ont donné leur nom à l'expérience. En utilisant un interféromètre de Mach-Zehnder, il est possible de faire interférer deux photons émis à deux temps différents. Nous utilisons le dispositif expérimental schématisé sur la figure 4.6 qui a déjà été discuté au chapitre 2. Dans ce dispositif, une première ligne à retard permet de créer deux impulsions d'excitation séparées par un retard  $\tau_0 + \Delta\tau$  avec  $\tau_0 = 3$  ns et  $\Delta\tau$  variable entre -2 et 3 ns.  $\tau_0$  est choisi de sorte qu'il soit supérieur au temps de vie radiatif des boîtes quantiques. La boîte émet alors deux photons séparés de  $\tau_0 + \Delta\tau$  qui sont couplés directement dans une fibre optique monomode et dirigés dans un interféromètre de Mach-Zehnder entièrement fibré. Les lames séparatrices sont ici des coupleurs de fibre 50/50 (FBS pour fiber beam splitter) qui jouent le même rôle grâce à un couplage d'ondes évanescentes entre deux fibres. Nous utilisons ensuite le même système de détection et de traitement du signal que pour l'expérience de HBT décrite au chapitre 2. Un corrélateur permet d'enregistrer les temps d'arrivée des photons sur chaque APD et construire l'historgramme des coïncidences entre les détections sur les deux APD.

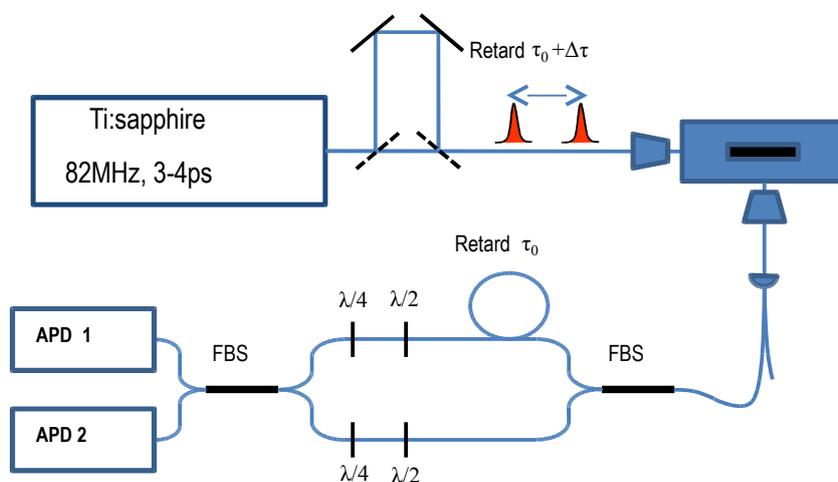


FIGURE 4.6 – Partie du schéma du dispositif expérimental permettant la réalisation de la mesure de Hong-Ou-Mandel. L'impulsion d'excitation est scindée en deux impulsions avec un retard  $\tau_0 + \Delta\tau$ . Les deux photons émis successivement sont directement couplés à interféromètre de Mach-Zehnder entièrement fibré. On appelle bras "long" le bras compensant le retard de  $\tau_0$  et "court" l'autre bras de l'interféromètre. La biréfringence des fibres optiques est compensée par deux dispositifs agissant comme des lames  $\lambda/2$  et  $\lambda/4$ .

Avec un tel montage, pour  $\Delta\tau = 0$ , plusieurs cas sont possibles :

- Si deux photons consécutifs prennent la même voie de l'interféromètre, ils arriveront sur le deuxième coupleur fibré avec un retard de  $\tau_0$ .
- Si le premier photon prend le bras court de l'interféromètre et le second le bras long, le retard entre les deux détections sera de  $2\tau_0$ .
- Enfin, si le premier photon prend le bras long et le second le bras court, alors les retards se compensent et les deux photons arrivent en même temps sur le coupleur.

Les probabilités de corrélation, dans le cas de photons discernables quand chaque photon arrive sur un détecteur différent, sont calculées en fonction du retard en prenant en compte les coefficients  $r$  et  $t$  et on trouve :

- $P(\tau = 0) = r^4 t^2 r^2 + t^4 r^2 t^2 = r^2 t^2 (r^4 + t^4)$
- $P(\tau = \tau_0) = t^4 t^2 r^2 + r^4 r^2 t^2 = r^2 t^2 (r^4 + t^4) = P(t = -\tau_0)$
- $P(\tau = 2\tau_0) = t^4 r^2 t^2$
- $= P(t = -2\tau_0) = r^4 t^2 r^2$

Les coïncidences à retard nul ( $\tau = 0$ ) ne sont possibles que si les photons sont discernables. Dans le cas contraire, comme nous l'avons vu, les photons coalescent. La mesure de l'intensité de coïncidences à  $\tau = 0$  donne donc une mesure de l'indiscernabilité. De la même manière, on calcule les probabilités de corrélation de deux photons issus d'une autre séquence de deux impulsions à  $\pm 12$  ns :

- $P(\tau = \pm 12 \text{ ns}) = 2(t^4 t^2 r^2 + r^4 r^2 t^2) = 2r^2 t^2 (r^4 + t^4)$
- $P(\tau = \pm 12 \text{ ns} + \tau_0) = 2t^4 r^2 t^2 + t^4 t^2 r^2 + r^4 r^2 t^2 = r^2 t^2 (3t^4 + r^4)$
- $P(\tau = \pm 12 \text{ ns} - \tau_0) = 2r^4 t^2 r^2 + t^4 t^2 r^2 + r^4 r^2 t^2 = r^2 t^2 (t^4 + 3r^4)$
- $P(\tau = \pm 12 \text{ ns} + 2\tau_0) = t^4 r^2 t^2$
- $P(\tau = \pm 12 \text{ ns} - 2\tau_0) = r^4 t^2 r^2$

Dans l'expérience de HOM, le retard  $\Delta\tau$  de la ligne à retard créant les deux impulsions d'excitation varie. En modélisant la réponse des détecteurs par des gaussiennes (comme aux chapitres précédents), on calcule la fonction de corrélation qui s'exprime alors :

$$\begin{aligned}
g^{(2)}(\tau) = A & \left( 2r^4 g^{(2)}(0) e^{-\left(\frac{\tau-\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} + 2t^4 g^{(2)}(0) e^{-\left(\frac{\tau+\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} \right. \\
& + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau-(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau+(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \\
& + t^4 e^{-\left(\frac{\tau-(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + r^4 e^{-\left(\frac{\tau+(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \\
& + 2(r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}}{\sigma}\right)^2} + 2(r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}}{\sigma}\right)^2} \\
& + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}+(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}+(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \\
& + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}-(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + (r^4 + t^4) e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}-(\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \\
& + 2t^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}-\tau_0}{\sigma}\right)^2} + 2r^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}+\tau_0}{\sigma}\right)^2} \\
& + 2r^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}+\tau_0}{\sigma}\right)^2} + 2t^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}-\tau_0}{\sigma}\right)^2} \\
& + t^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}+\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} + r^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}-\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} \\
& + t^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}-(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + r^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}+(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \\
& + t^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}+\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} + r^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}-\Delta\tau}{\sigma}\right)^2} \\
& \left. + r^4 e^{-\left(\frac{\tau-\tau_{rep}+(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} + t^4 e^{-\left(\frac{\tau+\tau_{rep}-(2\tau_0+\Delta\tau)}{\sigma}\right)^2} \right) \tag{4.36}
\end{aligned}$$

où  $\tau_{rep} = 12$  ns représente le taux de répétition du laser, A est une constante de normalisation et  $g^{(2)}(0)$  est la valeur des coïncidences à retard nul. Les histogrammes attendus avec cette fonction sont représentés sur la figure 4.7 pour  $r^2 = 0, 4$  et  $t^2 = 0, 6$ , correspondant aux coefficients mesurés, et pour deux retards  $\Delta\tau=0$  ns et  $\Delta\tau=0,5$  ns. Les simulations en noir (haut) montrent les histogrammes dans le cas où les photons sont discernables et ne coalescent pas. L'amplitude centrale est égale à l'amplitude des premiers pics satellites. Lorsque les photons sont totalement indiscernables (bas), ils coalescent et on n'observe aucune coïncidence à retard nul. En variant le retard  $\Delta\tau$ , on modifie le recouvrement temporel entre les deux photons. La valeur de  $g^{(2)}(0)$  augmente et lorsqu'il n'y a plus de recouvrement entre les photons, on retrouve la même probabilité que pour des photons discernables.

## 4.4 Modélisation des expériences

### 4.4.1 États de photons émis par une boîte quantique

Les photons émis par une boîte quantique ne sont pas des états nombres : le mode contient bien un photon unique, mais l'enveloppe du paquet d'onde est déterminée lors de l'émission par le temps de vie  $T_1$  et le temps de cohérence  $T_2$  de la boîte. En particulier, l'interaction d'une boîte avec son environnement entraîne des déphasages et des fluctuations de l'énergie, responsables de la perte de l'indiscernabilité des photons

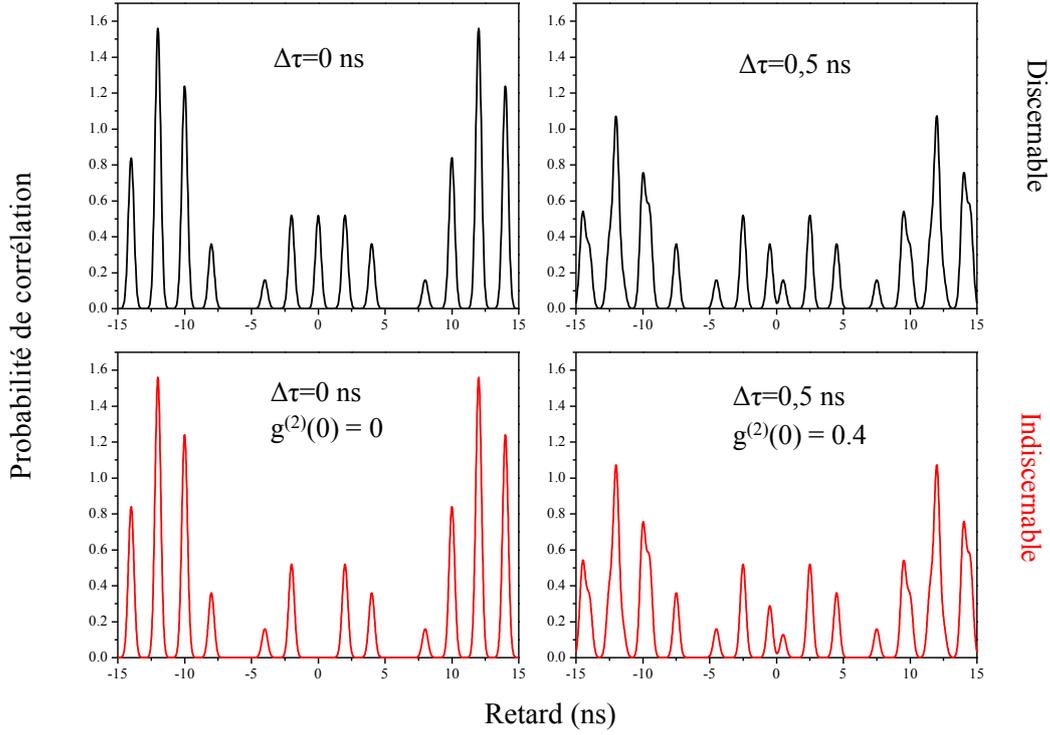


FIGURE 4.7 – Simulation des mesures de corrélations d’une expérience de HOM, avec  $\tau_0=2$  ns, et pour deux valeurs du retard  $\Delta\tau$ , égales à 0 et 0,5 ns. Les simulations sont effectuées avec  $r^2=0,4$  et  $t^2=0,6$ , ce qui correspond aux valeurs mesurées expérimentalement. Sur les courbes du haut la simulation est effectuée pour des photons discernables, et sur celle du bas, pour des photons indiscernables.

[104]. Ces interactions, liées au couplage avec les phonons et les charges environnantes, peuvent être modélisées par un bruit blanc, processus stochastique totalement décorrélé dans le temps, possédant la statistique d’une force de Langevin  $F(t)$  [150] et dont les corrélations sont données par la moyenne statistique :

$$\langle F_i(t)F_j(t') \rangle = 2\Gamma\delta_{ij}\delta(t-t') \quad (4.37)$$

où  $\delta$  est le symbole de Kronecker indiquant que les fluctuations de deux systèmes  $i$  et  $j$  indépendants, sont indépendantes.  $\Gamma$  représente le taux de déphasage de la boîte relié au déphasage pur, tel que  $T_2^* = 1/\Gamma$  et  $1/T_2 = 1/2T_1 + 1/T_2^*$ .

En appelant  $\Gamma_1 = 1/T_1$  le taux d’émission spontanée, l’état d’un photon émis à l’instant  $t$  est donné par :

$$K e^{-\frac{\Gamma_1}{2}t} e^{-i[\Phi_i(t)+(\omega_0+\Delta)t]} H(t) \hat{a}^\dagger \equiv \xi_i(t) \hat{a}^\dagger$$

où  $\xi$  définit l’enveloppe du paquet d’onde, avec  $K$  une constante de normalisation,  $H$  la fonction de Heavyside, nulle pour un temps négatif et égale à 1 sinon,  $\hbar\omega_0$  l’énergie

de la transition optique du système isolé et  $\Delta$  la fluctuation de cette énergie due aux interactions avec l'environnement. La phase  $\Phi_i(t)$  est la phase du système à deux niveaux, sujette aux variations modélisées par la force de Langevin, et satisfaisant aux relations :

$$\begin{aligned} \Phi(t) &= \int_0^t F_i(t') dt' \\ \langle e^{i\Phi_i(t) - i\Phi_j(t')} \rangle &= e^{-\Gamma|t-t'|\delta_{i,j}} \end{aligned} \quad (4.38)$$

où  $i \neq j$  si les deux phases sont indépendantes (i.e deux photons émis par deux boîtes quantiques différentes ou deux photons émis par une même boîte après un temps suffisamment long), et  $i = j$  dans le cas contraire. De plus, la condition de normalisation du paquet d'onde,  $\int_0^\infty |\xi(t)|^2 dt = 1$ , impose  $|K|^2 = \Gamma_1$ .

#### 4.4.2 Mesure du temps de cohérence

A partir de cette modélisation de l'interaction entre la boîte quantique et son environnement, on calcule la fonction de corrélation du premier ordre, donnant le temps de cohérence. Bien que le résultat semble évident, ce calcul permet entre autres, de définir les grandeurs utilisées dans le calcul de la fonction de corrélation d'ordre 2 et de fournir une validation du modèle utilisé. La mesure du temps de cohérence est effectuée à l'aide d'un interféromètre de Mach-Zehnder replié, que l'on modélise par une lame semi-réfléchissante, comme décrite précédemment pour les expériences de HBT et HOM. Les différentes voies de l'interféromètre sont numérotées telles que sur la figure 4.8. La voie 5 est considérée comme la voie mobile de notre interféromètre. Sa longueur moyenne est égale à celle de la voie fixe, et le déphasage induit par le parcours dans ce bras n'est donc pas pris en compte. Seul son écart à la moyenne, induit un retard  $\delta\tau$  au paquet d'onde du photon qui l'emprunte. On peut alors écrire les relations suivantes sur les opérateurs création :

$$\begin{aligned} \hat{a}_3^\dagger(t) &= -r\xi(t)\hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_4^\dagger(t) &= t\xi(t)\hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_5^\dagger(t) &= \hat{a}_3^\dagger(t + \delta\tau) = -r\xi(t + \delta\tau)\hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_6^\dagger(t) &= \hat{a}_4^\dagger = t\xi(t)\hat{a}_1^\dagger \\ \hat{a}_7^\dagger(t) &= r^2 t^2 [\xi(t) + \xi(t + \delta\tau)] \hat{a}_1^\dagger \end{aligned} \quad (4.39)$$

En utilisant la relation sur les phases données par l'équation 4.38, la probabilité  $P$  de détecter un photon dans la voie 7 est :

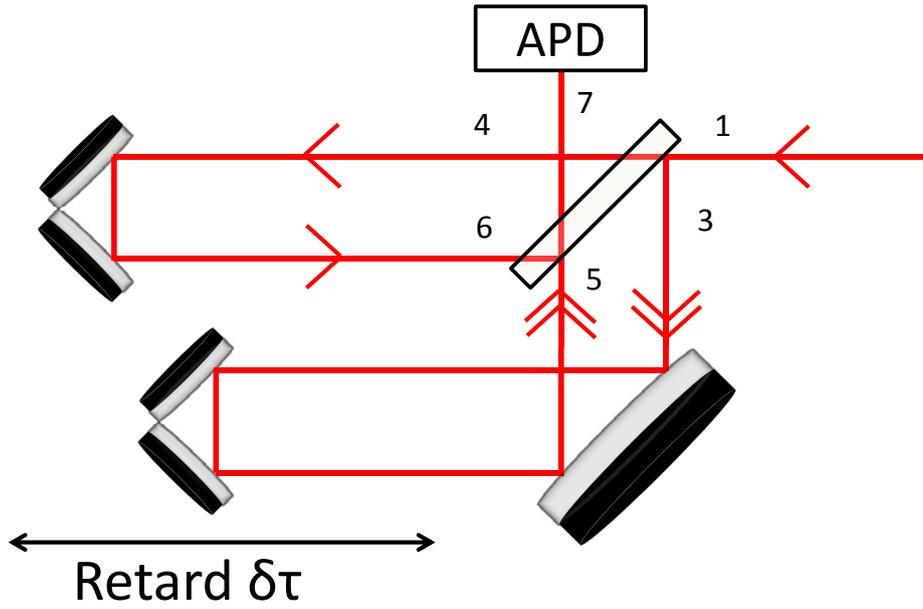


FIGURE 4.8 – Schéma de l'interféromètre de Mach-Zehnder replié utilisé pour la mesure des corrélations de premier ordre. Les différents chemins optiques sont numérotés de 1 à 7.

$$\begin{aligned}
P &= \int_{-\infty}^{\infty} \langle 0 | \hat{a}_7^\dagger(t) \hat{a}_7(t) | 0 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dt r^2 t^2 [ |\xi(t)|^2 + |\xi(t + \delta\tau)|^2 + (\xi(t)\mu^*(t + \delta\tau) + cc) ] dt \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} r^2 t^2 |K|^2 [ e^{-\Gamma_1 t} H(t) + e^{-\Gamma_1(t+\delta\tau)} H(t + \delta\tau) \\
&\quad + (e^{-\Gamma_1(t+\delta\tau/2)} e^{i\omega\delta\tau} e^{-\Gamma|\delta\tau|} + cc) H(t) H(t + \delta\tau) ] dt \\
&= r^2 t^2 |K|^2 \left[ \frac{2}{\Gamma_1} + \int_{-\infty}^{\infty} 2 \cos(\omega\delta\tau) e^{-\Gamma_1(t+\delta\tau/2)} e^{-\Gamma|\delta\tau|} H(t) H(t + \delta\tau) \right] dt \\
&= 2r^2 t^2 |K|^2 \left[ \frac{1}{\Gamma_1} + \frac{\cos(\omega\delta\tau)}{\Gamma_1} e^{-(\Gamma_1/2+\Gamma)|\delta\tau|} \right] \\
&= 2r^2 t^2 [ 1 + \cos(\omega\delta\tau) e^{-|\delta\tau|/T_2} ]
\end{aligned} \tag{4.40}$$

On retrouve la probabilité donnée par l'optique classique. On observe des franges d'interférence, dont le contraste varie comme  $e^{-|\delta\tau|/T_2}$ . Notre modélisation aboutit bien à la conclusion que  $T_2$  représente le temps de cohérence.

Par ailleurs on peut remarquer que le calcul de la fonction de corrélation, dans le mode 1 (i.e avant l'interféromètre), est donné par :

$$\begin{aligned}
g^{(1)}(\delta\tau) &= \frac{\langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t + \delta\tau) \rangle}{\langle \hat{a}_1^\dagger(t) \hat{a}_1(t) \rangle} = \frac{\langle \xi(t) \xi^*(t + \delta\tau) \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 \rangle}{\langle |\xi(t)|^2 \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_1 \rangle} = \frac{\langle \xi(t) \xi^*(t + \delta\tau) \rangle}{\langle |\xi(t)|^2 \rangle} \\
&= \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-\Gamma_1 t + \delta\tau} e^{i\omega\delta\tau} e^{-\Gamma|\delta\tau|} H(t) H(t + \delta\tau) \\
&= e^{-|\delta\tau|/T_2} e^{i\omega\delta\tau}
\end{aligned} \tag{4.41}$$

Ce calcul, plus simple, permet de retrouver que  $|g^{(1)}(\delta\tau)| = e^{-|\delta\tau|/T_2}$  calculé avant l'interféromètre représente l'évolution du contraste des franges d'interférence.

### 4.4.3 Interférences à deux photons

Pour le calcul de la corrélation du deuxième ordre dans l'expérience de HOM, nous ne nous intéressons qu'aux photons arrivant en même temps sur le coupleur fibré. La fonction est donc entièrement déterminée par le retard entre les arrivées des photons, lié à la différence entre le retard des deux impulsions d'excitation et la différence de marche dans les bras de l'interféromètre. Ce retard est appelé  $\Delta\tau$  (voir figure 4.6) et il est donc possible de réécrire les opérateurs de sortie du coupleur :

$$\begin{aligned}
\hat{a}_3^\dagger(t) &= -r\xi_1(t)\hat{a}_1^\dagger + t\xi_2(t + \Delta\tau)\hat{a}_2^\dagger \\
\hat{a}_4^\dagger(t + \tau) &= r\xi_1(t + \tau)\hat{a}_1^\dagger + t\xi_2(t + \tau + \Delta\tau)\hat{a}_2^\dagger
\end{aligned} \tag{4.42}$$

où  $\xi_1$  (resp.  $\xi_2$ ) décrit le paquet d'onde du photon émis après l'excitation par la première (resp. deuxième) impulsion. Pour considérer que les deux photons sont indépendants, il est nécessaire que le retard  $\tau_0$  entre les 2 impulsions d'excitation soit bien plus grand que le temps de vie radiatif. Nous considérons ainsi qu'il n'y a pas de corrélations entre les phases  $\Phi_1$  et  $\Phi_2$  des photons.

Les corrélations du deuxième ordre sont proportionnelles à :

$$\langle \hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t + \tau) \hat{a}_4(t + \tau) \hat{a}_3(t) \rangle$$

Comme nous l'avons dit dans la partie 4.2.2, et contrairement au calcul permettant d'arriver à l'équation (4.33), les opérateurs ici ne commutent plus. Ainsi on trouve :

$$\begin{aligned}
\hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t + \tau) &= (-r^2 \xi_1(t) \xi_2(t + \tau + \Delta\tau) + t^2 \xi_1(t + \tau) \xi_2(t + \Delta\tau)) \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2^\dagger \\
\hat{a}_4(t + \tau) \hat{a}_3(t) &= (-r^2 \xi_1^*(t) \xi_2^*(t + \tau + \Delta\tau) + t^2 \xi_1^*(t + \tau) \xi_2^*(t + \Delta\tau)) \hat{a}_1 \hat{a}_2
\end{aligned} \tag{4.43}$$

Dans notre cas, les termes croisés sont nuls car ils correspondent à une double annihilation d'un état à un photon. On trouve donc :

$$\begin{aligned}
\hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t + \tau) \hat{a}_4(t + \tau) \hat{a}_3(t) &= (r^4 |\xi_1(t)|^2 |\xi_2(t + \tau + \Delta\tau)|^2 + t^4 |\xi_1(t + \tau)|^2 |\xi_2(t + \Delta\tau)|^2 \\
&\quad - r^2 t^2 (\xi_1(t) \xi_1^*(t + \tau) \xi_2(t + \tau + \Delta\tau) \xi_2^*(t + \Delta\tau) + cc))
\end{aligned} \tag{4.44}$$

qui conduit à :

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t+\tau) \hat{a}_4(t+\tau) \hat{a}_3(t) \rangle = & \left\{ r^4 e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} H(t) H(t+\tau+\Delta\tau) \right. \\ & + t^4 e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} H(t+\tau) H(t+\Delta\tau) \\ & - r^2 t^2 e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} \left( \langle e^{-i\Phi_1(t)+i\Phi_1(t+\tau)} e^{-i\Phi_2(t+\tau+\Delta\tau)+i\Phi_2(t+\Delta\tau)} \right. \\ & \left. \left. H(t) H(t+\tau) H(t+\Delta\tau) H(t+\tau+\Delta\tau) \rangle + cc \right) \right\} \end{aligned} \quad (4.45)$$

On rappelle que la moyenne statistique sur les déphasages est donnée par :

$$\langle e^{-i\Phi_1(t_1)+i\Phi_1(t_2)} \rangle = e^{-\Gamma|t_1-t_2|}$$

et l'expression devient :

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t+\tau) \hat{a}_4(t+\tau) \hat{a}_3(t) \rangle = & e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} \left\{ r^4 H(t) H(t+\tau+\Delta\tau) + t^4 H(t+\tau) H(t+\Delta\tau) \right. \\ & \left. - 2r^2 t^2 \left( e^{-2\Gamma|\tau|} H(t) H(t+\tau) H(t+\Delta\tau) H(t+\tau+\Delta\tau) \right) \right\} \end{aligned} \quad (4.46)$$

Pour obtenir l'expression de la fonction de corrélations il faut intégrer sur la variable temporelle  $t$ . De plus, comme nous mesurons l'aire centrale de l'histogramme des corrélations, il faut également intégrer sur la variable  $\tau$ . La fonction de corrélation ne dépend plus que de la variable  $\Delta\tau$ . La prise en compte du domaine de définition de la fonction de Heavyside donne l'expression :

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} g^{(2)}(\Delta\tau) dt.d\tau \propto & \Gamma_1^2 \left\{ \int_{\tau=-\infty}^{\infty} \int_{t=-\max(0,-\tau-\Delta\tau)}^{\infty} e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} (r^4 + t^4) dt.d\tau \right. \\ & \left. - \int_{\tau=-\infty}^{\infty} \int_{t=-\max(0,-\tau,-\Delta\tau,-\tau-\Delta\tau)}^{\infty} 2r^2 t^2 e^{-\Gamma_1(2t+\tau+\Delta\tau)} e^{-2\Gamma|\tau|} dt.d\tau \right\} \\ \propto & \Gamma_1^2 \left\{ \frac{r^4 + t^4}{\Gamma_1^2} - 2r^2 t^2 \frac{e^{-\Gamma_1|\Delta\tau|}}{\Gamma_1(\Gamma_1 + 2\Gamma)} \right\} \end{aligned} \quad (4.47)$$

La normalisation doit se faire en divisant par  $\langle \hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_3(t) \rangle \langle \hat{a}_4^\dagger(t) \hat{a}_4(t) \rangle$ . Expérimentalement nous n'avons pas accès à cette valeur et la normalisation usuelle s'effectue en divisant par la somme des aires des deux pics latéraux de l'histogramme :  $2(r^4 + t^4)$ . Lorsque les photons sont discernables, on trouve :

$$g^{(2)}(0) = 1/2 \quad (4.48)$$

correspondant à la probabilité que deux photons discernables soient détectés à retard nul. On trouve finalement :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\Delta\tau) &= \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{2r^2 t^2}{1 - 2r^2 t^2} \frac{\Gamma_1}{\Gamma_1 + 2\Gamma} e^{-\Gamma_1|\Delta\tau|} \right) \\ &= \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{2r^2 t^2}{1 - 2r^2 t^2} \frac{T_2}{2T_1} e^{-\Gamma_1|\Delta\tau|} \right) \end{aligned} \quad (4.49)$$

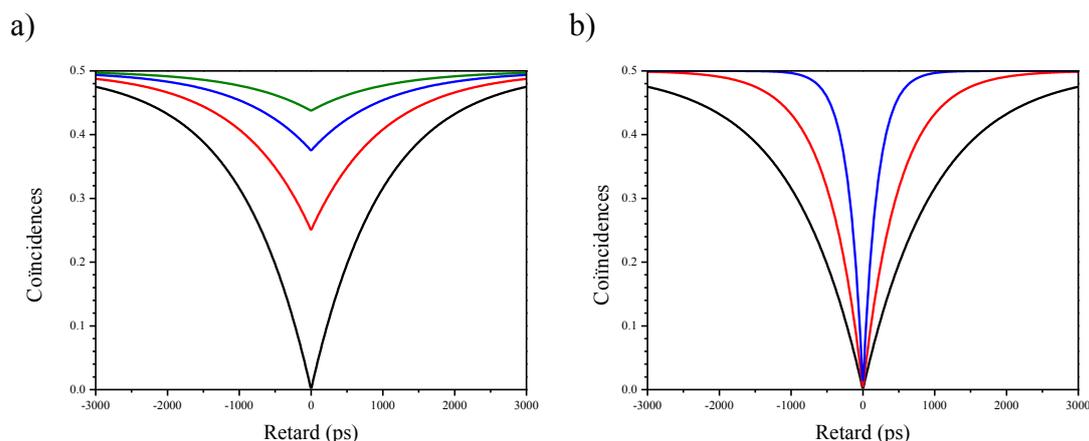


FIGURE 4.9 – Simulation de la courbe de Mandel pour différents  $T_1$  et  $T_2$  : a)  $T_1 = 1$  ns est fixé et  $T_2 = 2$  ns (noir), 1 ns (rouge), 500 ps (bleu) et 250 ps (vert). b)  $T_2/2T_1 = 1$  pour  $T_1 = 1$  ns (noir), 500 ps (rouge) et 250 ps (bleu)

où nous avons utilisé la relation  $2/T_2 = \Gamma_1 + 2\Gamma$ . Nous voyons qu'à  $\Delta\tau = 0$  la profondeur de la courbe de Mandel (ou "Mandel dip") est directement reliée au degré d'indiscernabilité  $T_2/2T_1$ . Dans le cas où  $r^2 = t^2 = 1/2$ , on trouve que :

- pour deux photons indiscernables,  $g^{(2)}(0) = 0$ . Les photons coalescent.
- pour deux photons discernables,  $g^{(2)}(0) = 1/2$ . On retrouve alors la valeur attendue pour la fonction de corrélation pour un état à 2 photons.

L'évolution de la courbe de Mandel est donnée figure 4.9 dans deux cas : en fonction du rapport  $T_2/2T_1$  à  $T_1$  fixé (1 ns) et en fonction de la valeur de  $T_1$  pour  $T_2/2T_1 = 1$ . Lorsque  $T_2$  diminue (figure (a)), le degré d'indiscernabilité des photons diminue et la profondeur du dip de la courbe de Mandel diminue. Le temps de vie caractérise la largeur du creux et lorsque  $T_1$  diminue, il se ressert (figure (b) tracée dans le cas de photons indiscernables).

## 4.5 Résultats expérimentaux

Nous présentons ici les résultats expérimentaux obtenus pour la boîte S3A. Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la transition étudiée est celle d'un exciton neutre, émettant à 915 nm. Le temps de vie résonant de l'exciton,  $T_1$ , est de 650 ps et son temps de cohérence,  $T_2$ , est de 950 ps. Ces résultats sont rappelés sur la figure 4.10. Le degré d'indiscernabilité attendu est donc de 0,73.

Les deux photons dont on mesure l'indiscernabilité sont obtenus en excitant la boîte avec deux impulsions successives. Chaque impulsion laser, séparée de 12,2 ns de la suivante, est scindée en deux impulsions d'égale intensité séparées par un retard

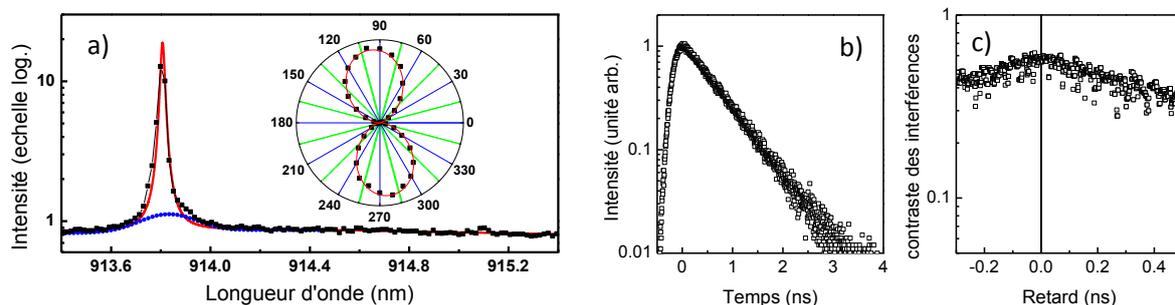


FIGURE 4.10 – Résumé des résultats obtenus sur la boîte S3A sous excitation résonante. a) Spectre et diagramme polaire (encart). b) Temps de vie mesuré de 650 ps. c) Temps de cohérence mesuré de 950 ps.

$\tau_0 + \Delta\tau$  au moyen d'une ligne à retard. Nous avons choisi un retard  $\tau_0=3$  ns de telle sorte qu'il soit supérieur à  $3T_1$  pour toutes les boîtes que nous observons, et  $\Delta\tau$  varie entre -2 ns et 3 ns. Les deux photons émis par la boîte sont directement couplés dans l'interféromètre de Mach-Zehnder fibré (figure 4.6). L'interféromètre est déséquilibré afin de compenser le retard  $\tau_0$  entre les deux photons. En mesurant les corrélations entre les temps d'arrivée des photons sur chaque APD, on reconstruit l'histogramme décrit précédemment.

La figure 4.11 (a) montre un tel histogramme obtenu pour  $\Delta\tau = 0$ , après une heure d'acquisition avec 80 000 coups/s/APD. Ceci nous permet d'obtenir un excellent rapport signal/bruit, diminuant ainsi l'incertitude liée à la mesure. Les données sont ajustées par la fonction multigaussienne décrite par l'équation 4.36. La valeur de  $g^{(2)}(0, \Delta\tau = 0)$  est obtenue en divisant l'aire de la gaussienne centrale, notée 1, par la somme des gaussiennes satellites 2 et 3. On obtient  $g^{(2)}(0) = 0,16$ . A partir de l'équation 4.49, on déduit l'expression de l'indiscernabilité  $\nu$  lorsque  $\Delta\tau = 0$  :

$$\nu = \frac{T_2}{2T_1} = \frac{1}{C} \left( \frac{1 - 2r^2t^2}{2r^2t^2} \right) (1 - 2g^{(2)}(0)) \quad (4.50)$$

où  $C$  est le contraste lié à l'interféromètre. Nous avons mesuré  $r^2 = 0,4$ ,  $t^2 = 0,6$  et  $C = 0,9$  à la longueur d'onde de la boîte étudiée (915 nm). L'indiscernabilité des photons émis par la boîte est donc de  $\nu = 0,81 \pm 0,03$ . On constate ici un écart d'environ 10% entre la valeur de l'indiscernabilité mesurée directement par l'expérience de HOM et celle calculée à partir de la mesure des temps caractéristiques. Cette différence sera discutée un peu plus loin.

En modifiant le retard entre les deux impulsions d'excitation, le recouvrement temporel entre les deux photons émis par la boîte est modifié. Les figures 4.11 (b) et (c) montrent les mesures de corrélation du second ordre pour  $\Delta\tau = 0,7$  ns et

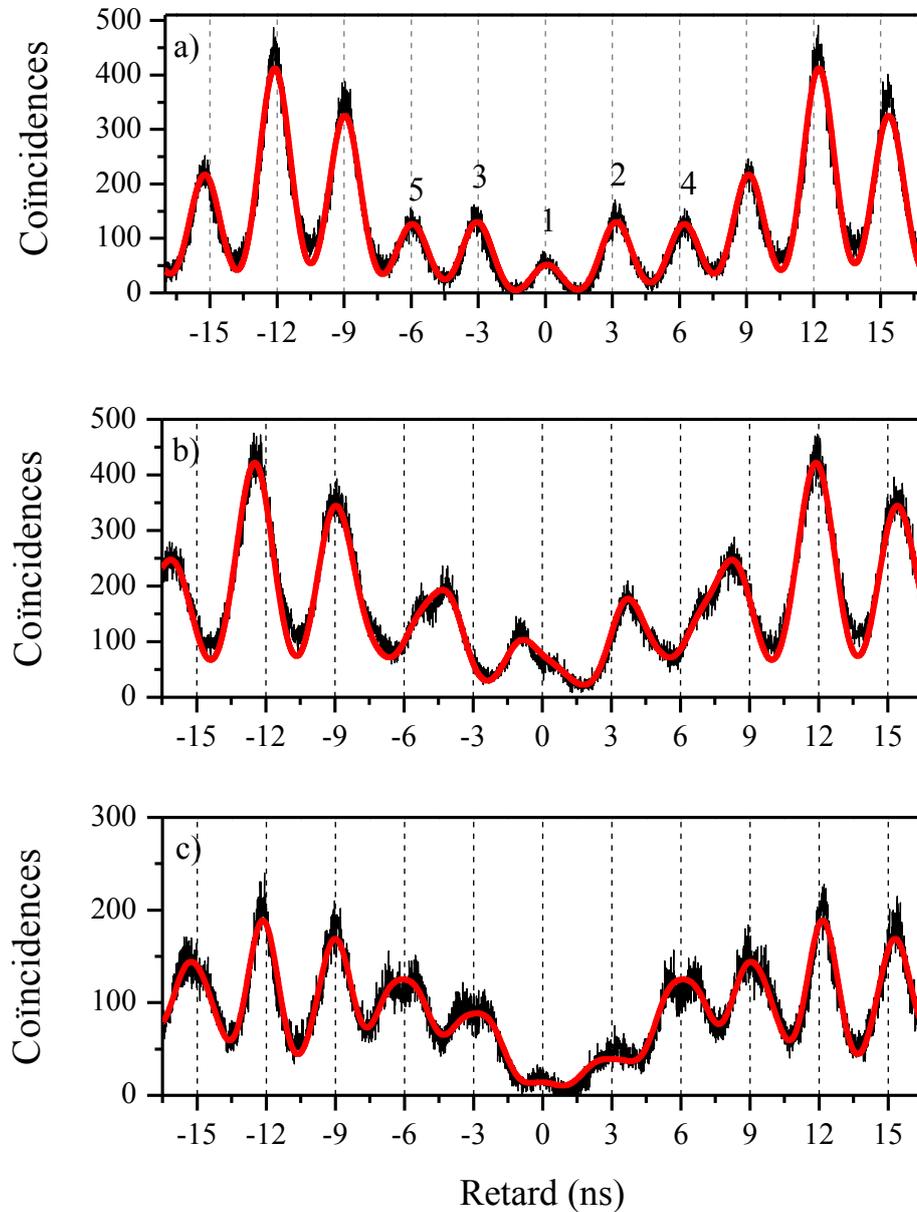


FIGURE 4.11 – Corrélation du deuxième ordre pour une interférence à deux photons issus de la boîte quantique S3A, pour trois retards  $\Delta\tau = 0$  ns (a),  $\Delta\tau = 0,7$  ns (b) et  $\Delta\tau = 2,2$  ns (c). Les données brutes sont en noir. Les courbes d'ajustement multigaussiennes sont en rouge. Dans la figure (a), le pic 1 correspond aux photons arrivant en même temps sur le second FBS, les pics 2 et 3 correspondent à un retard  $\pm\tau_0$  et les pics 4 et 5 correspondent à un retard  $\pm 2\tau_0$  entre les détections des deux photons.

$\Delta\tau = 2,2$  ns. L'ajustement permet de remonter à la corrélation  $g^{(2)}(\Delta\tau)$ . On trouve alors  $g^{(2)}(\Delta\tau = 0,7 \text{ ns}) = 0,32$  et  $g^{(2)}(\Delta\tau = 2,2 \text{ ns}) = 0,45$ . Alors que  $\Delta\tau$  augmente, le recouvrement entre les photons diminue et la visibilité des interférences diminue.

En faisant varier  $\Delta\tau$ , on construit point par point la courbe de Mandel (figure 4.12), caractéristique d'une source de photons indiscernables. Lorsque les photons ne se recouvrent pas, on retrouve la valeur  $g^{(2)} = 1/2$  caractéristique d'un état à 2 photons. L'évolution théorique de la courbe est tracée en fonction du retard en suivant l'équation 4.49. La courbe verte représente la valeur de  $g^{(2)}(\Delta\tau)$  en fixant les valeurs de  $T_1 = 670ps$  et  $T_2 = 950ps$  mesurées indépendamment, fixant  $\nu = T_2/2T_1 = 0,7$ . On remarque alors un écart aux valeurs mesurées, ces dernières montrant une plus grande indiscernabilité que celle attendue. Pour obtenir la courbe rouge, la valeur du temps de cohérence devient un paramètre ajustable, alors que la valeur de  $T_1$  est gardée constante, telle que mesurée indépendamment. On constate alors un meilleur accord entre les données expérimentales et l'évolution calculée. Le temps de cohérence obtenu est alors plus grand que celui mesuré par FTIR, conduisant au degré d'indiscernabilité  $\nu = 0,80 \pm 0,03$ .

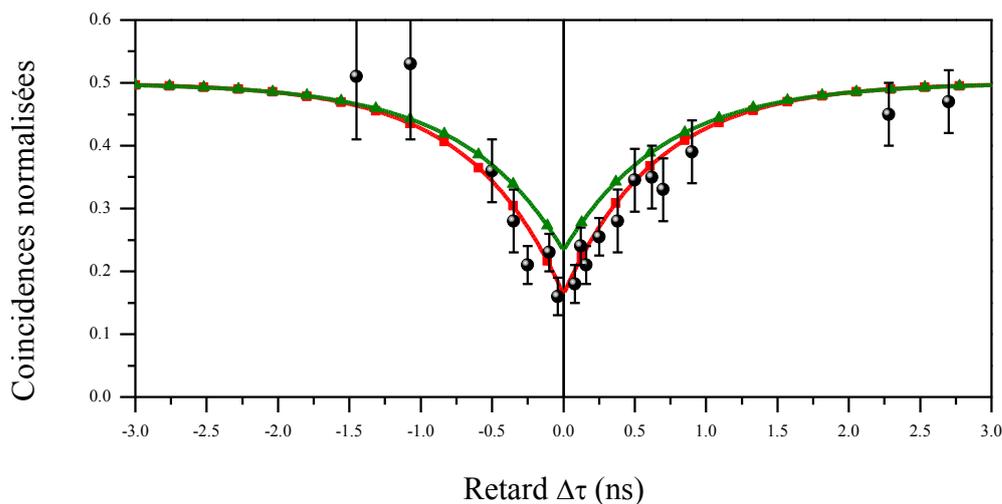


FIGURE 4.12 – Évolution de l'aire normalisée des coïncidences à retard nul de la fonction de corrélation du deuxième ordre en fonction de l'écart de chemin optique entre la ligne à retard à l'excitation et l'interféromètre de Mach-Zehnder fibré à la détection. En vert (resp. en rouge), l'évolution calculée en utilisant les valeurs de  $T_1$  et  $T_2$  mesurées indépendamment (resp. en fixant  $T_1$  et en ajustant  $T_2$ ).

### Discussion sur la mesure du temps de cohérence

Le calcul de la fonction de corrélation du deuxième ordre a été effectuée en considérant que les deux photons émis sont indépendants. Ce calcul s'applique idéalement à deux boîtes quantiques avec la même énergie de transition et les mêmes temps de vie et de cohérence.

Cependant, dans le cas d'une boîte unique, considérer que les émissions des photons à 3 ns d'intervalle sont indépendantes n'est pas toujours justifié. L'explication généralement retenue consiste à prendre en compte les fluctuations de charges électrostatiques dans l'environnement de la boîte. Ces fluctuations sont à l'origine d'une diffusion spectrale sur des temps caractéristiques de l'ordre de la micro-seconde [104, 116], et l'énergie de la transition optique de la boîte est modifiée. Lors d'une expérience de spectroscopie par transformée de Fourier, les interférences sont mesurées à partir d'accumulation de signal sur des temps de l'ordre de la seconde, bien plus grands que les temps caractéristiques des fluctuations. On observe alors un brouillage des interférences, diminuant la valeur du temps de cohérence mesuré. Dans d'une expérience de HOM en revanche, deux photons émis à des temps très proches ( $\approx 3$  ns) interfèrent. La mesure des corrélations ne dépend plus du temps d'intégration, et comme l'environnement électrostatique de la boîte n'a pas le temps de fluctuer entre l'émission des deux photons, la visibilité obtenue est donc supérieure au rapport  $T_2/2T_1$  mesuré indépendamment. Le temps de cohérence mesuré correspond au temps de cohérence intrinsèque à la transition optique étudiée, c'est à dire sans les effets de diffusion spectrale.

Ce phénomène permet de comprendre la différence entre la mesure du temps de cohérence et la visibilité de l'histogramme des corrélations, déjà observée par quelques groupes [146, 147].

## 4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons modélisé les interactions entre une boîte et son environnement par une force de Langevin, ce qui nous a permis de calculer les fonctions de corrélations du premier et du second ordre des photons émis par une boîte quantique. Nous avons notamment vu que le degré d'indiscernabilité des photons est fortement lié à ces interactions.

De plus, l'expérience de HOM en fonction du retard entre les photons donne une mesure alternative du temps de cohérence et du temps de vie. Le temps de vie mesuré aux chapitres précédents est en bon accord avec les mesures de HOM. En revanche, nous avons vu que le temps de cohérence est différent suivant la mesure. La mesure interférométrique donne accès à une valeur moyennée sur un temps long devant les fluctuations du système alors que la mesure de HOM donne accès à un temps intrinsèque, lié à la cohérence du système à deux niveaux non affectée par des phénomènes de déphasages extrinsèques. On voit alors que ce temps est proche de la limite radiative et que les boîtes quantiques sous excitation résonante sont de bon émetteurs de photons uniques indiscernables.



# Chapitre 5

## Conclusions et perspectives

### 5.1 Conclusions

Au cours de cette thèse, nous avons étudié les propriétés d'émission sous excitation non-résonante et résonante de boîtes quantiques auto-organisées d'InAs/GaAs. Ces études ont pu être menées grâce à une géométrie guidée, permettant d'isoler les boîtes quantiques ainsi que de découpler spatialement les directions d'excitation et de collection de la luminescence. Si dans un premier temps, l'excitation non-résonante des boîtes quantiques nous a permis de les caractériser, l'essentiel du travail présenté dans ce manuscrit a été effectué sous excitation résonante. En effet, l'excitation résonante permet de s'affranchir des processus de déphasage, de préserver la cohérence du système et favoriser l'émission de photons indiscernables.

Nous avons montré que les boîtes sont un système à deux niveaux pouvant être utilisé comme un bit quantique. L'excitation résonante permet la préparation cohérente d'un état quantique que nous avons mis en évidence par l'observation des oscillations de Rabi. L'amortissement des oscillations, synonyme de déphasage, est lié à deux phénomènes physiques de nature différente. Dans un premier temps, les phonons acoustiques longitudinaux de la matrice de GaAs se couplent de manière résonante à l'état habillé exciton-photon, entraînant une perte de cohérence. Des mesures en fonction de la température nous ont permis de corroborer cette hypothèse. Dans un deuxième temps, certaines boîtes présentent un amortissement caractéristique d'une relaxation des populations, caractérisé par une diminution de la durée de vie radiative de l'état excité. Le couplage entre le système à deux niveaux et le mode électromagnétique unidimensionnel semble être à l'origine de ce phénomène. L'absorption du laser par le système à deux niveaux modifie localement l'indice effectif du milieu, modifiant alors le couplage entre le système à deux niveaux et la lumière.

Les boîtes peuvent également être utilisées comme des émetteurs de photons uniques indiscernables à la demande. La cohérence du système devant être préservée afin d'être uniquement limitée par la durée de vie radiative ( $T_2 = 2T_1$ ), il est nécessaire d'exciter les boîtes à la résonance de la transition optique. En générant des photons avec deux impulsions successives, séparées de 3 ns, nous avons alors mis en évidence que le degré d'indiscernabilité mesuré est supérieur à celui attendu. En réalisant les expériences de HOM avec une boîte dont nous avons mesuré le temps de vie  $T_1$  et le temps de cohérence  $T_2$  de manière indépendante (conduisant à un degré d'indiscernabilité  $T_2/2T_1 = 0,7$ ), nous avons reconstruit la courbe de Mandel et observé sur cette boîte une indiscernabilité supérieure à 0,8. Nous mettons alors en évidence que les processus de déphasage agissant lors d'une excitation résonante ont lieu sur des temps caractéristiques bien supérieurs à la nanoseconde. Les fluctuations des charges environnantes ayant lieu sur des temps proches de la milliseconde, elles sont très certainement à l'origine de ces déphasages. De plus, des mesures récentes sur d'autres boîtes, réalisées dans notre groupe et qui ne sont pas décrites ici, ont montré un degré d'indiscernabilité de 0,95, corroborant cette interprétation.

## 5.2 Perspectives

Nous sommes parvenus à l'heure actuelle avec nos sources de photons uniques à obtenir un degré d'indiscernabilité proche de un. Ceci nous permet d'envisager des expériences d'optique quantique avec ce système. Plusieurs protocoles ont déjà été démontrés par le passé avec des boîtes quantiques [86, 147]. Au sein de l'équipe, une nouvelle thèse a débuté autour de deux objectifs principaux : montrer l'intrication temps-position des deux photons issus d'une même boîte à partir des échantillons présentés dans ce manuscrit, et développer de nouvelles structures pour envisager des protocoles plus complexes, telles que l'intrication de photons provenant de deux boîtes contrôlées de manière cohérente.

### 5.2.1 Vers l'intrication temps-position

L'étude de l'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique est la première étape vers d'éventuelles applications en information quantique, où il est nécessaire avant tout d'intriquer de nombreux qubits. Une première expérience que l'on envisage est d'intriquer deux photons d'une même boîte ou de deux boîtes différentes. Pour intriquer deux photons provenant d'une même boîte, il existe plusieurs protocoles. De nombreux groupes ont montré l'intrication de deux photons provenant de la cascade radiative du biexciton [151, 152]. Dans notre cas, comme nous travaillons à la résonance de la transition excitonique, nous souhaitons intriquer deux photons générés par deux impulsions.

Lors d'une expérience de HOM, deux photons peuvent être superposés spatialement (et temporellement) et peuvent coalescer. Cette expérience d'interférences à

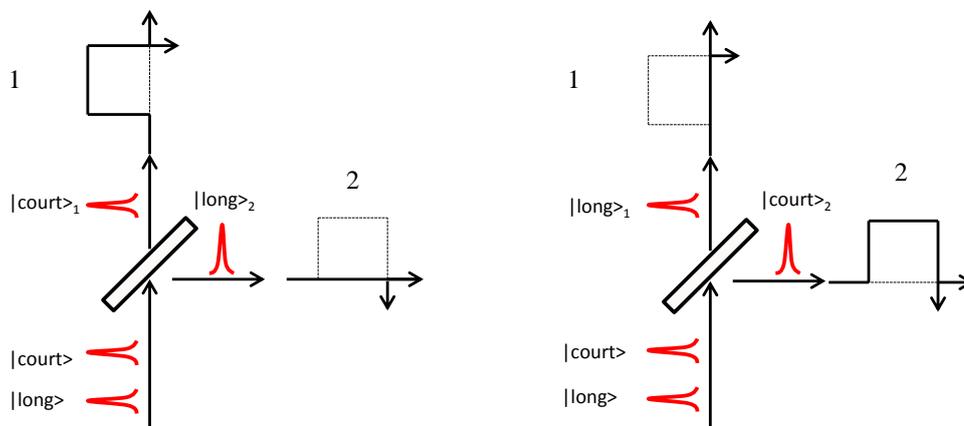


FIGURE 5.1 – Schéma de l'intrication temporelle de deux photons excitoniques. Les deux chemins qui interfèrent sont représentés. Les traits pleins représentent le trajet pris par chaque photon.

deux photons peut également être réalisée en utilisant deux interféromètres de Mach-Zehnder déséquilibrés (voir figure 5.1) [153]. Une lame semiréfléchissante sépare chacun des photons dans un des deux interféromètres. Comme pour une expérience de HOM usuelle, lorsque le premier photon, que l'on appelle  $|court\rangle$ , prend la voie longue et le second, que l'on appelle  $|long\rangle$ , prend la voie courte de leur interféromètre respectif, ils arrivent en même temps sur la lame semiréfléchissante en sortie des interféromètres. On montre alors que si les photons sont indiscernables, on observe une coalescence délocalisée, c'est-à-dire que si un photon prend une voie de sortie, l'autre prendra la voie correspondante pour l'interféromètre qu'il a emprunté.

Avec cette expérience de HOM délocalisé, on intrique les deux photons en temps-position, c'est-à-dire qu'il est impossible de savoir quel photon a été émis en premier et lequel a été émis en second. L'état de sortie de l'interféromètre s'écrit :

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|long\rangle_1 |court\rangle_2 + |long\rangle_2 |court\rangle_1) \quad (5.1)$$

où les indices 1 et 2 indiquent l'interféromètre emprunté (voir figure 5.1). L'intrication est réalisée par la première lame semiréfléchissante, lorsque l'on sélectionne a posteriori les événements où chaque photon se propage dans un interféromètre différent et qu'ils arrivent en même temps sur la lame séparatrice de sortie de leur interféromètre.

Un calcul théorique [7] indique que l'intrication des états sera observable expérimentalement, c'est-à-dire que les inégalités de Bell seront violées, si le degré d'indiscernabilité des deux photons est supérieur à 0,7. Or, comme nous avons montré que nos sources émettent des photons indiscernables à un degré proche de un, nous devrions obtenir une visibilité maximum. Cette expérience est en cours de réalisation, mais la

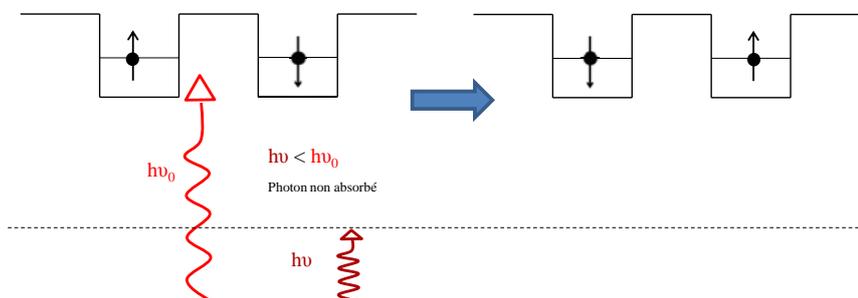


FIGURE 5.2 – Schéma du mécanisme de retournement de spin des électrons confinés dans deux boîtes par un état virtuel créé par un photon de pompe dans la zone de transparence.

difficulté technique réside principalement dans la stabilisation des deux interféromètres.

## 5.2.2 Vers l'intrication de deux bits quantiques

L'étape suivante consiste à intriquer deux bits quantiques issus de deux boîtes quantiques indépendantes, à partir d'une expérience à trois faisceaux. Cette expérience est au coeur de la thèse d'Antoine Reigue qui commence cette année. Elle se base essentiellement sur des travaux théoriques originaux [154] dans un schéma pompe-sonde à trois faisceaux où les deux bits quantiques sont initialisés indépendamment, un troisième faisceau non-absorbé venant intriquer les deux états. En effet, un mécanisme de téléportation d'électrons entre deux boîtes quantiques a été prédit, par l'intermédiaire de la transformation d'un exciton brillant virtuel en un exciton noir (figure 5.2 (a)). Ce schéma de téléportation quantique n'a jamais été mis en évidence expérimentalement et est une approche originale dans la réalisation de portes logiques, que nous souhaitons explorer.

L'interaction entre les spins localisés dans les boîtes 1 et 2 (voir figure 5.3 (b)), se fait via un photon  $\sigma^+$  dans la zone de transparence qui est couplé à un exciton virtuel de moment total  $J_z=1$ . Ce couplage permet un retournement de spin au moyen d'un état intermédiaire qui fait passer l'exciton virtuel brillant dans un état noir de moment total  $J_z = 2$ . Les étapes nécessaires à ces renversements de spin s'expliquent par des processus d'échange de Pauli, pris en compte complètement dans la théorie à N corps des bosons composites développée par M. Combescot à l'INSP.

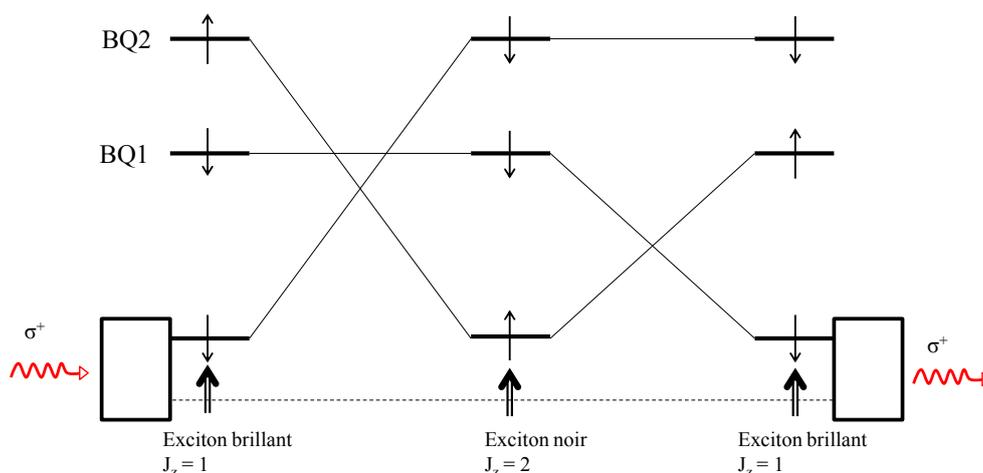


FIGURE 5.3 – Diagramme des interactions entre deux états excités de deux boîtes quantiques et un photon  $\sigma^+$  dans la zone de transparence. Le spin de la boîte 1 est transféré ou téléporté dans la boîte 2.

### 5.2.3 De nouvelles générations d'échantillons

Les échantillons que nous utilisons à l'heure actuelle montrent leurs limites en terme d'efficacité d'extraction de la luminescence et de cohérence. Pour améliorer les résultats obtenus, plusieurs voies d'amélioration sont possibles :

- Augmenter l'efficacité d'extraction du signal. En effet, en vue d'applications futures, une source avec une efficacité de 100% est nécessaire pour la réalisation de portes logiques ou de répéteurs quantiques. Ces derniers permettent de transmettre des signaux quantiques sur de longues distances malgré les pertes dans les fibres optiques. Une efficacité inférieure à 100% signifie une perte supplémentaire de signal, donc d'information. D'un point de vue plus pragmatique, une source efficace permet d'effectuer des mesures avec moins de bruit, plus rapidement. Les mesures de corrélation faisant intervenir la détection de deux photons, le temps d'acquisition est donc inversement proportionnel à  $n^2$  où  $n$  est le nombre de photons. Ainsi, en doublant l'efficacité d'extraction, on divise par quatre les temps d'acquisition, augmentant significativement le nombre de mesures possibles dans des conditions expérimentales fixées.
- Contrôler la position des boîtes quantiques. D'une part, cela aiderait également à l'efficacité d'extraction. D'autre part, en contrôlant la position des boîtes quantiques sur l'échantillon, on peut imaginer graver les guides d'ondes autour des boîtes, permettant d'étudier plus précisément l'influence de la position de la boîte dans le guide. Cela a été réalisé avec succès pour des boîtes en micropilier [87] en cherchant d'abord la luminescence des boîtes puis en gravant autour le micropilier. On peut aussi imaginer des structures permettant d'exciter plusieurs

guides avec une même impulsion. Une des applications de ce genre de structure peut être l'intrication de plusieurs boîtes entre elles, excitées par une même impulsion, de manière cohérente.

- c) Maitriser l'environnement électrostatique fluctuant et l'état de charge de la boîte quantique. Les fluctuations de charges sont un des problèmes principaux des échantillons actuels. L'émission résonante est fortement affectée, et l'ajout d'un laser He-Ne à basse puissance modifie le comportement des boîtes. Nous avons également vu que ces fluctuations modifient le temps de cohérence donnant lieu à des résultats différents suivant que l'on réalise une mesure intégrée de  $g^{(1)}$ , ou une mesure instantanée de  $g^{(2)}$ . La croissance d'échantillons dopés - dans lesquels un champ électrique, interne ou externe, pourrait permettre de résoudre ce problème - est en cours de réalisation. Des études récentes [65, 155, 156] ont montré que de tels structures sont réalisables et pourraient également permettre de contrôler l'état de charge des boîtes quantiques, et ainsi permettre l'étude déterministe d'excitons neutres ou chargés. Nous avons observé à plusieurs reprises que les états chargés semblent posséder un temps de cohérence supérieur à celui des états neutres.
- d) Améliorer la structure des guides d'ondes. Le couplage de la boîte au guide d'onde est un paramètre important. Dans notre cas, il permet d'expliquer de manière phénoménologique la diminution de la durée de vie des boîtes quantiques lors d'une excitation résonante. Une conception de guides différents, associé au contrôle de la position des boîtes permettrait d'étudier ce mécanisme. Ainsi, d'autres structures de guide sont envisageables, comme par exemple des guides à cristaux photoniques où il a été montré récemment qu'une émission directionnelle d'états polarisés circulairement pourrait avoir lieu [157].

Nous développons ainsi depuis peu des nouveaux échantillons de boîtes quantiques conçus au sein du laboratoire. Ces nouveaux échantillons sont réalisés par P. Atkinson, dont la spécialité est la croissance de boîtes GaAs/AlGaAs. Ces boîtes croissent dans des nano-trous créés sur un substrat de GaAs. Les tailles typiques des boîtes sont de quelques nanomètres de hauteur dans la direction de croissance et de quelques dizaines de nanomètres dans le plan. Les barrières autour des boîtes de GaAs sont en AlGaAs [158].

Ces boîtes possèdent deux caractéristiques importantes : ne pas avoir de couche de mouillage et être sans contraintes [159]. Ceci a pour effet d'obtenir des boîtes dont les interactions avec l'environnement sont réduites. En particulier l'absence de couche de mouillage supprime une partie des défauts de la structure à proximité de la boîte, à l'origine du piégeage des charges fluctuantes. Notons pour finir que grâce à cette technique d'épitaxie, il est possible de faire croître des molécules de boîtes quantiques, donnant accès à de nouveaux états électroniques couplés et permettant de réaliser des portes logiques à plusieurs bits quantiques.

# Bibliographie

- [1] D. Estève, J.M. Raimond, and J. Dalibard. *Quantum entanglement and information processing*. Elsevier, 2004.
- [2] A. Aspect, P. Grangier, and G. Roger. Experimental tests of realistic local theories via Bell's theorem. *Phys. Rev. Lett.*, 47 :460, 1981.
- [3] A.K. Ekert. Quantum cryptography based on bell's theorem. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :661, 1991.
- [4] C.H. Bennet, F. Bessette, G. Brassard, L. Salvail, and J. Smolin. Experimental quantum cryptography. *Journal of Cryptology*, 5 :3, 1992.
- [5] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, and H. Zbinden. Quantum cryptography. *Rev. of Mod. Phys.*, 74 :145, 2002.
- [6] D.P. Di Vincenzo. Quantum computation. *Science*, 270 :255, 1995.
- [7] M. Larqué, A. Beveratos, and I. Robert-Philip. Entangling single photons on a beamsplitter. *The European Physical Journal D*, 47(1) :119–125, February 2008.
- [8] H. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters*, 39(11) :691–695, September 1977.
- [9] Frank Diedrich and Herbert Walther. Nonclassical radiation of a single stored ion. *Physical Review Letters*, 58(3) :203–206, January 1987.
- [10] Y. Nakamura, Y. Pashkin, and J.S. Tsai. Coherent control of macroscopic quantum states in a single-cooper-pair box. *Nature*, 398 :786–788, 1999.
- [11] D. Loss and D.P. Di Vincenzo. Quantum computation with quantum dots. *Phys. Rev. A.*, 57 :120–126, 1998.
- [12] J.Y. Marzin, J.M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard. Photoluminescence of single quantum dots obtained by self-organized growth on gaas. *Phys. Rev. Lett.*, 73 :716–719, 1994.
- [13] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto. Triggered single photons from a quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 86 :1502, 2001.
- [14] V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and G. Björk. Single quantum dots emit single photons at a time : Antibunching experiments. *APPL. Phys. Lett.*, 78 :2476, 2001.

- [15] A. Muller, E. Flagg, P. Bianucci, X. Wang, D. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. Salamo, M. Xiao, and C. Shih. Resonance fluorescence from a coherently driven semiconductor quantum dot in a cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 99 :187402, 2007.
- [16] 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. *Phys. Rev. B*, 78 :073301, Aug 2008.
- [17] T Takagahara. Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 60(4) :2638–2652, July 1999.
- [18] C. Kammerer, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J.P. Reithmaier, A. Forchel, and J.M. Gérard. Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects. *Phys. Rev. B*, 66 :041306, Jul 2002.
- [19] R. Melet. *Manipulation tout optique des états électroniques d'une boîte quantique unique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2008.
- [20] A. Enderlin. *Contrôle cohérent des états électroniques d'une boîte quantique unique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2010.
- [21] C. Tonin. *Manipulation cohérente de l'émission résonnante d'une boîte quantique unique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2012.
- [22] A. Enderlin, M. Ravaro, V. Voliotis, and R. Grousson. Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms. *Phys. Rev. B*, 80 :085301, Aug 2009.
- [23] R.H. Brown and R.Q. Twiss. Interferometry of the intensity fluctuations in light. I. basic theory : The correlation between photons in coherent beams of radiation. *Royal Society of London Proceedings Series A*, 242 :300–324, nov 1957.
- [24] Z.Y. Ou, C.K. Hong, and L Mandel. Violations of locality in correlation measurements with a beam splitter. *Physics Letters A*, 122(1) :11–13, May 1987.
- [25] J.-L. Basdevant and J. Dalibard. *Mécanique quantique*. Editions de l'école polytechnique, 2006.
- [26] Y. Manin. Classical computing, quantum computing, and shor's factoring algorithm. *arXive e-print quant-ph/9903008*, 1999.
- [27] M.A. Nielsen and I.L. Chuang. *Quantum Computation and Quantum information*. Cambridge University Press, 2000.
- [28] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. *Processus d'interaction entre photons et atomes*. CNRS Edition, 2001.
- [29] G. Brassard, N. Lütkenhaus, T. Mor, and B.C Sanders. Limitations on practical quantum cryptography. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :1330, 2000.
- [30] 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 interference. *Europhys. Lett.*, 1 :174–179, 1986.

- [31] J.M. Raimond, M. Brune, and S. Haroche. Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity. *Rev. Mod. Phys.*, 73 :565–582, 2001.
- [32] C. Monroe. Quantum information processing with atoms and photons. *Nature*, 416 :238–246, 2002.
- [33] Th. Basché, WE 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.
- [34] 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) :1–4, 1996.
- [35] F. Treussart, V. Alléaume, R. andÂ Le Floc ‘h, L. Xiao, J.-M. Courty, and J.-F. Roch. Direct Measurement of the Photon Statistics of a Triggered Single Photon Source. *Physical Review Letters*, 89(9) :093601, August 2002.
- [36] F. Jelezko and J. Wrachtrup. Single defect centres in diamond : A review. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 203 :3207–3225, 2006.
- [37] A. Lohrmann, S. Pezzagna, I. Dobriquets, P. Spinicelli, V. Jacques, J.-F. Roch, J. Meijer, and A.M. Zaitsev. Diamond based light-emitting diode for visible single-photon emission at room temperature. *Appl. Phys. Lett.*, 99 :251106, 2011.
- [38] N. Mizuochi, T. Makino, H. Kato, D. Takeuchi, M. Ogura, H. Okushi, M. Nothaft, P. Neumann, A. Gali, F. Jelezko, J. Wrachtrup, and S. Yamasaki. Electrically driven single-photon source at room temperature in diamond. *Nature photonics*, 6, 2012.
- [39] A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, A. Villing, J.-P. Poizat, and P. Grangier. Single Photon Quantum Cryptography. *Physical Review Letters*, 89(18) :187901, October 2002.
- [40] A. Sipahigil, M.L. Goldman, E. Togan, Y. Chu, M. Markham, D.J. Twitchen, A.S. Zibrov, A. Kubanek, and M.D. Lukin. Quantum interference of single photons from remote nitrogen-vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 108 :143601, 2012.
- [41] A. Sipahigil, K.D. Jahnke, L.J. Rogers, T. Teraji, J. Isoya, A.S. Zibrov, F. Jelezko, and M.D. Lukin. Indistinguishable photons from separated silicon-vacancy centers in diamond. *Phys. Rev. Lett.*, 113 :113602, 2014.
- [42] M.G. Bawendi. Synthesis and spectroscopy of ii-vi quantum dots : an overview. *NATO ASI ser., Ser. B.*, 340 :339–356, 1995.
- [43] P Michler, A Imamoglu, and MD Mason. Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature. *Nature*, 406(August) :968–970, 2000.
- [44] 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.

- [45] L. Coolen, X. Brokmann, and J.-P. Hermier. Modeling coherence measurements on a spectrally diffusing single-photon emitter. *Phys. Rev. A.*, 76 :033824, 2007.
- [46] Al. Efros and M. Rosen. Random telegraph signal in the photoluminescence intensity of a single quantum dot. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :1110–1113, Feb 1997.
- [47] B. Mahler, P. Spinicelli, S. Buil, X. Quelin, J.-P. Hermier, and B. Dubertret. Towards non-blinking colloidal quantum dots. *Nature materials*, 7(8) :659–64, August 2008.
- [48] G.E. Cragg and A.L. Efros. Suppression of auger processes in confined structures. *Nano Letters*, 10(1) :313–317, 2010.
- [49] D. Elvira, R. Hostein, F. Bruno, L. Monniello, A. Michon, G. Beaudoin, R. Braive, I. Robert-Philip, I. Abram, I. Sagnes, and A. Beveratos. Single InAsP/InP quantum dots as telecommunications-band photon sources. *Physical Review B*, 84(19) :195302, 2011.
- [50] D. Elvira, A. Michon, B. Fain, G. Patriarche, G. Beaudoin, I. Robert-Philip, Y. Vachtomin, A. V. Divochiy, K. V. Smirnov, G.N. Goltsman, I. Sagnes, and A. Beveratos. Time-resolved spectroscopy of inasp/inp(001) quantum dots emitting near 2  $\mu\text{m}$ . *Appl. Phys. Lett.*, 97 :131907, 2010.
- [51] D. Elvira. *Sources à boîtes quantiques semiconductrices pour la nanophotonique et l'information quantique aux longueurs d'onde des télécommunications*. PhD thesis, Université Paris XI, 2012.
- [52] R. Hostein, R. Braive, L. Le Gratiet, A. Talneau, G. Beaudoin, I. Robert-Philip, I. Sagnes, and A. Beveratos. Demonstration of coherent emission from high- $\beta$  photonic crystal nanolasers at room temperature. *Optics Letters*, 35 :1154–1157, Apr 2010.
- [53] K.D. Jöns, P. Atkinson, M. Müller, M. Heldmaier, S.M. Ulrich, O.G. Schmidt, and P. Michler. Triggered indistinguishable single photons with narrow line widths from site-controlled quantum dots. *Nano Letters*, 13(1) :126–130, 2013.
- [54] W. Shockley. Energy band structures in semiconductors. *Phys. Rev.*, 78 :173–174, Apr 1950.
- [55] E.O. Kane. Band structure of indium antimonide. *J. Phys. Chem. Solids*, 1, 1957.
- [56] P.Y. Yu and M. Candona. *Fundamentals of semiconductors*. Springer, 1999.
- [57] Thomas Bahder. Eight-band k.p model of strained zinc-blende crystals. *Physical Review B*, 41(17) :11992–12001, June 1990.
- [58] I.M. Stransky and L. von Krastanov. Abhandlungen der mathematisch-naturwissenschaftlichen klasse. *akad. Wiss. Lit. Mainz Math.-Naturwiss. Klasse IIb*, 146 :797, 1939.
- [59] 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, 2002.
- [60] R.S. Knox. *Theory of excitons*. Academic Press Inc, 1963.
- [61] A. Schliwa, M. Winkelnkemper, and D. Bimberg. Few-particle energies versus geometry and composition of  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  self-organized quantum dots. *Physical Review B*, 79(7) :075443, February 2009.
- [62] RJ Warburton, C Schäfflein, D Haft, and F Bickel. Optical emission from a charge-tunable quantum ring. *Nature*, 405(June) :8–11, 2000.
- [63] T. Warming, E. Siebert, a. Schliwa, E. Stock, R. Zimmermann, and D. Bimberg. Hole-hole and electron-hole exchange interactions in single InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B*, 79(12) :125316, March 2009.
- [64] B. Urbaszek, R. Warburton, K. Karrai, B. Gerardot, P. Petroff, and J. Garcia. Fine Structure of Highly Charged Excitons in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 90(24) :247403, June 2003.
- [65] B. Eble. *Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d'InAs/GaAs sous pompage optique orienté*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2006.
- [66] E.L. Ivchenko. Fine structure of excitonic levels in semiconductor nanostructures. *Phys. Stat. sol. (a)*, 164 :487–492, 1997.
- [67] G. Bester and A. Zunger. Cylindrically shaped zinc-blende semiconductor quantum dots do not have cylindrical symmetry : atomistic symmetry, atomistic relaxation, and piezo effects. *Phys. Rev. B*, 71 :045318, 2005.
- [68] J.M. Luttinger and W. Kohn. Motion of electrons and holes in perturbed periodic fields. *Phys. Rev.*, 97 :869–883, 1955.
- [69] G.L. Bir and G.E. Pikus. *Symetry and strain induced effects in semiconductors*. Ed. Wiley, 1974.
- [70] C. Tonin, R. Hostein, V. Voliotis, R. Grousson, A. Lemaitre, and A. Martinez. Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 85(15) :155303, April 2012.
- [71] 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.
- [72] L.C. Andreani and G. Panzarini. Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory. *Phys. Rev. B*, 60(19) :276–279, 1999.
- [73] H.C. Goldwire. Oscillator strengths for electric dipole transitions of hydrogen. *The Astrophysical Journal Supplement Series*, 17 :445, 1968.
- [74] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 62(8) :R4809–R4812, August 2000.

- [75] 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.
- [76] E. Deleporte, S. Hameau, J.N. Isaia, Y. Guldner, O. Verzelen, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, and J.M. Gerard. Polaron states in inas/gaas quantum dots : strong electron-phonon coupling regime. *Physica E*, 13 :155–160, 2002.
- [77] M. Bayer and A. Forchel. Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in  $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}\text{As}/\text{GaAs}$  self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 65(4) :041308, January 2002.
- [78] 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.
- [79] H. Robinson and B. Goldberg. Light-induced spectral diffusion in single self-assembled quantum dots. *Physical Review B*, 61(8) :R5086–R5089, February 2000.
- [80] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Few-particle effects in single CdTe quantum dots. *Physical Review B*, 65(12) :121314, March 2002.
- [81] H.S. NGuyen. *Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semiconductrices*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2011.
- [82] A. Berthelot. *Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2008.
- [83] E.M. Purcell, H.C Thorrey, and R.V. Pound. Resonance absorption by nuclear magnetic moments in a solid. *Phys. Rev.*, 69 :37–38, 1946.
- [84] P. Michler. *Single semiconductor quantum dots*. Springer, 2009.
- [85] C. Santori, G. Solomon, M. Pelton, and Y. Yamamoto. Time-resolved spectroscopy of multiexcitonic decay in an InAs quantum dot. *Physical Review B*, 65(7) :073310, February 2002.
- [86] O. Gazzano, M. Almeida, A. Nowak, S. Portalupi, A. Lemaître, I. Sagnes, A. White, and P. Senellart. Entangling quantum-logic gate operated with an ultrabright semiconductor single-photon source. *Phys. Rev. Lett.*, 110 :250501, 2013.
- [87] O. Gazzano, S. Michaelis de Vasconcellos, C. Arnold, A. Nowak, E. Galopin, I. Sagnes, L. Lanco, A. Lemaître, and P. Senellart. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. *Nature Communications*, 4(1425), 2013.
- [88] S. Ates, S. 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. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :167402, Oct 2009.
- [89] L. Monniello, A. Reigue, R. Hostein, A. Lemaître, A. Martinez, R. Grousson, and V. Voliotis. Indistinguishable single photons generated by a quantum dot

- under resonant excitation observable without postselection. *Physical Review B*, 90(4) :041303, July 2014.
- [90] B. Patton, U. Woggon, and W. Langbein. Coherent Control and Polarization Readout of Individual Excitonic States. *Physical Review Letters*, 95(26) :266401, December 2005.
- [91] R. Loudon. *Quantum theory of light*. Oxford University Press, third edition, 2000.
- [92] E. Moreau. *Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semi-conductrice dans une microcavité optique*. PhD thesis, Université Paris VI, 2002.
- [93] M. Grundmann and D. Bimberg. Theory of random population for quantum dots. *Physical Review B*, 55(15) :9740–9745, April 1997.
- [94] G. Muñoz Matutano, J. Gomis, B. Alén, J. Martínez-Pastor, L. Seravalli, P. Frigeri, and S. Franchi. Exciton, biexciton and trion recombination dynamics in a single quantum dot under selective optical pumping. *Physica E*, 40 :2100–2103, 2008.
- [95] M. Abbarchi, C. Mastrandrea, T. Kuroda, T. Mano, A. Vinattieri, K. Sakoda, and M. Gurioli. Poissonian statistics of excitonic complexes in quantum dots. *J. Appl. Phys.*, 106 :053504, 2009.
- [96] J. Gomis-Bresco, G. Muñoz Matutano, J. Martínez-Pastor, B. Alén, L. Seravalli, P. Frigeri, G. Trevisi, and S. Franchi. Random population model to explain the recombination dynamics in single InAs/GaAs quantum dots under selective optical pumping. *New Journal of Physics*, 13(2) :023022, February 2011.
- [97] M. Ediger, P.A. Dalgarno, J.M. Smith, R.J. Warburton, K. Karrai, B.D. Gerardot, and P.M. Petroff. Controlled generation of neutral, negatively charged and positively charged excitons in the same single quantum dot. *AIP conference Proceedings*, 772 :667–668, 2005.
- [98] Y. Varshni. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica*, 34 :149–154, 1967.
- [99] K.P. O'Donnell and X. Chen. Temperature dependence of semiconductor band gaps. *Applied Physics Letters*, 58(25) :2924, 1991.
- [100] I. Yeo, J.D. Song, and J. Lee. Temperature-dependent energy band gap variation in self-organized InAs quantum dots. *Appl. Phys. Lett.*, 99 :151909, 2011.
- [101] I. Favero, A. Berthelot, and G. Cassabois. Temperature dependence of the zero-phonon linewidth in quantum dots : An effect of the fluctuating environment. *Physical Review B*, 75(7) :073308, February 2007.
- [102] O. Verzelen, R. Ferreira, and G. Bastard. Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 88(14) :146803, March 2002.

- [103] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck. Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement. *Physical Review B*, 71(11) :115328, March 2005.
- [104] A Berthelot, I Favero, and G Cassabois. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature Physics*, pages 1–8, 2006.
- [105] T. Stievater, Xiaoqin Li, D. Steel, D. Gammon, D. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. Sham. Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 87(13) :133603, September 2001.
- [106] a Zrenner, E Beham, S Stuffer, F Findeis, M Bichler, and G Abstreiter. Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature*, 418(6898) :612–4, August 2002.
- [107] 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(17) :177402, October 2010.
- [108] P. Gold, M. Gschrey, C. Schneider, S. Höfling, A. Forchel, M. Kamp, and S. Reitzenstein. Single quantum dot photocurrent spectroscopy in the cavity quantum electrodynamics regime. *Phys. Rev. B*, 86 :161301(R), 2012.
- [109] C. Matthiesen, A. N. Vamivakas, and M. Atatüre. Subnatural Linewidth Single Photons from a Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 108(9) :093602, February 2012.
- [110] A.V. Kuhlmann, J. Houel, D. Brunner, A. Ludwig, D. Reuter, A.D. Wieck, and R.J. Warburton. A dark-field microscope for background-free detection of resonance fluorescence from single semiconductor quantum dots operating in a set-and-forget mode. *Rev. Sci. Instrum.*, 84 :073905, 2013.
- [111] H.S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, and G. Cassabois. Ultra-coherent single photon source. *Appl. Phys. Lett.*, 99 :261904, 2011.
- [112] I. Favero, G ; Cassabois, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, J. Tignon, C. Delalande, G. Bastard, Ph. Roussignol, and J.-M. Gérard. Acoustic phonon sidebands in the emission line of single inas/gaas quantum dots. *Phys. Rev. B*, 68 :233301, 2003.
- [113] C.B. Duke and G.D. Mahan. Phonon-broadened impurity spectra. I. Density of states. *Physical Review*, 139(6A) :A1965–A1982, September 1965.
- [114] A.J. Leggett, S. Chakravarty, and A.T. Dorsey. Dynamics of the dissipative two-state system. *Reviews of Modern Phys.*, 59(1) :1–85, January 1987.
- [115] H.S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Diederichs, and G. Cassabois. Optically-gated resonant emission of single quantum dots. *Phys. Rev. B*, 108 :057401, Jan 2012.

- [116] H.S. Nguyen, G. Sallen, M. Abbarchi, R. Ferreira, C. Voisin, Ph. Roussignol, G. Cassabois, and C. Diederichs. Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 87 :115305, Mar 2013.
- [117] J. Houel, A. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, R. Warburton, B. Gerardot, P. Dalgarno, A. Badolato, P. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, and A. Wieck. Probing single-charge fluctuations at a GaAs/AlAs interface using laser spectroscopy on a nearby InGaAs quantum dot. *Physical Review Letters*, 108(10) :1–5, March 2012.
- [118] H. Kamada and T. Kutsuwa. Broadening of single quantum dot exciton luminescence spectra due to interaction with randomly fluctuating environmental charges. *Phys. Rev. B*, 78 :155324, 2008.
- [119] A. Messiah. *Mécanique quantique*. Dunod, 1995.
- [120] H. Gibbs. Incoherent resonance fluorescence from a rb atomic beam excited by a short coherent optical pulse. *Phys. Rev. A*, 8 :446–455, Jul 1973.
- [121] L. Allen and J.H. Eberly. *Optical resonance and two-level atoms*. Wiley (New York), 1975.
- [122] S. Weiler, A. Ulhaq, S. M. Ulrich, D. Richter, M. Jetter, P. Michler, C. Roy, and S. Hughes. Phonon-assisted incoherent excitation of a quantum dot and its emission properties. *Physical Review B*, 86(24) :241304, December 2012.
- [123] P. Tighineanu, R. Daveau, E. H. Lee, J. D. Song, S. Stobbe, and P. Lodahl. Decay dynamics and exciton localization in large GaAs quantum dots grown by droplet epitaxy. *Physical Review B*, 88(15) :155320, October 2013.
- [124] P. Machnikowski and L. Jacak. Resonant nature of phonon-induced damping of Rabi oscillations in quantum dots. *Physical Review B*, 69(19) :1–4, May 2004.
- [125] X.Y. Wang, C.K. Shih, J.Y. Zhang, W.Q. Ma, G.J. Salamo, and M. Xiao. Enhanced phonon-assisted absorption of InGaAs quantum dots confined in a planar microcavity. *2005 Quantum Electronics and Laser Science Conference*, 2 :1076–1078, 2005.
- [126] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, a. M. Fox, and M. S. Skolnick. Damping of Exciton Rabi Rotations by Acoustic Phonons in Optically Excited InGaAs/GaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 104(1) :017402, January 2010.
- [127] G.D. Mahan. *Many particle physics : physics of solids and liquids*. Springer, 2000.
- [128] I.-K. Oh and J. Singh. Excitonic relaxation through phonon interaction in quantum wells. *J. Lumin.*, 85 :233–246, 2000.
- [129] D. P.S. McCutcheon and A. Nazir. Quantum dot Rabi rotations beyond the weak exciton-phonon coupling regime. *New Journal of Physics*, 12(11) :113042, November 2010.

- [130] D. Wigger, S. Lüker, D. E. Reiter, V. M. Axt, P. Machnikowski, and T. Kuhn. Energy transport and coherence properties of acoustic phonons generated by optical excitation of a quantum dot. *J. Phys. : Condensed Matter*, 26 :355802, 2014.
- [131] S. Stuffer, P. Machnikowski, P. Ester, M. Bichler, V. Axt, T. Kuhn, and a. Zrenner. Two-photon Rabi oscillations in a single  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dot. *Physical Review B*, 73(12) :125304, March 2006.
- [132] Y.-J. Wei, Y. He, Y.-M. He, C.-Y. Lu, J.-W. Pan, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, D.P.S. McCutcheon, and A. Nazir. Temperature-Dependent Mollow Triplet Spectra from a Single Quantum Dot : Rabi Frequency Renormalization and Sideband Linewidth Insensitivity. *Physical Review Letters*, 113(9) :097401, August 2014.
- [133] P.-L. Ardel, L. Hanschke, K. A. Fischer, K. Müller, A. Kleinkauf, M. Koller, A. Bechtold, T. Simmet, J. Wierzbowski, H. Riedl, G. Abstreiter, and J.J. Finley. Dissipative preparation of the exciton and biexciton in self-assembled quantum dots on picosecond time scales. *Phys. Rev. B*, 90 :241404, 2014.
- [134] L. Monniello, C. Tonin, R. Hostein, A. Lemaitre, A. Martinez, V. Voliotis, and R. Grousson. Excitation-Induced Dephasing in a Resonantly Driven InAs/GaAs Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 111(2) :026403, July 2013.
- [135] 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, 2000.
- [136] K. Kuroda, T. Kuroda, K. Watanabe, T. Mano, K. Sakoda, G. Kido, and N. Koguchi. Final-state readout of exciton qubits by observing resonantly excited photoluminescence in quantum dots. *Applied Physics Letters*, 90(5) :051909, 2007.
- [137] G. Cui and M. G. Raymer. Quantum efficiency of single-photon sources in the cavity-QED strong-coupling regime. *Optics Express*, 13(24) :9660, 2005.
- [138] R. Miller, T.E. Northup, K.M. Birnbaum, A. Boca, A.D. Boozer, and H.J. Kimble. Trapped atoms in cavity QED : coupling quantized light and matter. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 38 :S551–S565, 2005.
- [139] A. Wickenbrock, P. Phoonthong, and F. Renzoni. Collective strong coupling in a lossy optical cavity. *Journal of Modern Optics*, 58 :1310–1316, 2011.
- [140] M. Fox. *Quantum optics : An introduction*. Oxford Master Series in Physics, 2006.
- [141] W. Demtröder. *Laser spectroscopy : Basic concepts and instrumentation*. Springer Science and Business Media, 2003.
- [142] R. Boyd, D. Gauthier, A. Gaeta, and A. Willner. Maximum time delay achievable on propagation through a slow-light medium. *Physical Review A*, 71(2) :023801, February 2005.

- [143] J. Marangos. Slow light in cool atoms. *Nature*, 397 :559–560, 1999.
- [144] P.C. Ku, C.J. Chang-Hasnain, and S.L. Chuang. Slow light in semiconductor heterostructures. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 40(5) :R93, 2007.
- [145] J. Bellessa, V. Voliotis, R. Grousson, X. Wang, M. Ogura, and H. Matsuhata. Quantum-size effects on radiative lifetimes and relaxation of excitons in semiconductor nanostructures. *Phys. Rev. B*, 58 :9933–9940, 1998.
- [146] C. Santori, D. Fattal, J. Vucković, G. S Solomon, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature*, 419(6907) :594–7, October 2002.
- [147] Y.-M. He, Y. He, Y.-J. Wei, D. Wu, M. Atatüre, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan. On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability. *Nature nanotechnology*, 8(3) :213–7, March 2013.
- [148] C. Aslangul. *Mécanique quantique 2*. De Boeck Université, 2008.
- [149] C. Hong, Z. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Phys. Rev. Lett.*, 59 :2044–2046, Nov 1987.
- [150] 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.
- [151] N. Akopian, N.H. Linder, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B.D. Gerardot, and P.M. Petroff. Entangled photon pairs from semiconductor quantum dots. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :130501, 2006.
- [152] R.J. Young, R.M. Stevenson, A.J. Shields, P. Atkinson, K. Cooper, and D.A. Ritchie. Entangled photons from the biexciton cascade of quantum dots. *Journal of Appl. Phys.*, 101 :O81711, 2007.
- [153] J. Franson. Bell inequality for position and time. *Phys. Rev. Lett.*, 62 :2205–2208, 1989.
- [154] M. Combescot, O. Betbeder, and Voliotis. Electron teleportation between quantum dots using virtual dark exciton. *Euro. Phys. Lett.*, 74(5) :868, 2006.
- [155] C. Arnold, V. Loo, A. Lemaître, I. Sagnes, O. Krebs, P. Voisin, P. Senellart, and L. Lanco. Cavity-enhanced real-time monitoring of single-charge jumps at the microsecond time scale. *Phys. Rev. X*, 4 :021004, 2014.
- [156] A.K. Nowak, S.L. Portalupi, V. Giesz, O. Gazzano, C. Dal Salvio, P.-F. Braun, K. Karrai, C. Arnold, L. Lanco, I. Sagnes, A. Lemaître, and P. Senellart. Deterministic and electrically tunable bright single-photon source. *Nature comm.*, 5(3240), 2014.
- [157] K H Madsen, S Ates, J Liu, A Javadi, S M Albrecht, I Yeo, S Stobbe, and P Lodahl. Efficient out-coupling of high-purity single photons from a coherent quantum dot in a photonic-crystal cavity. *Physical Review B*, 90(15) :155303, October 2014.

- [158] P. Atkinson, E. Zallo, and O.G Schmidt. Independent wavelength and density control of uniform gaas/algaas quantum dots grown by infilling self-assembled nanoholes. *Journal of Appl. Phys.*, 112 :054303, 2012.
- [159] Y.H. Huo, A. Rastelli, and O.G. Schmidt. Ultra-small excitonic fine structure splitting in highly symmetric quantum dos on GaAs (001) substrate. *Appl. Phys. Lett.*, 102 :152105, 2013.