HAL open science

Indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation résonnante continue

Raphaël Proux

▶ To cite this version:

Raphaël Proux. Indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation résonnante continue. Matière Condensée [cond-mat]. École Normale Supérieure (Paris), 2015. Français. NNT : . tel-01278553v1

HAL Id: tel-01278553

https://theses.hal.science/tel-01278553v1

Submitted on 24 Feb 2016 (v1), last revised 28 Sep 2017 (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.

Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

Thèse de Doctorat de l'École Normale Supérieure

Spécialité : Physique
Département de Physique — Laboratoire Pierre Aigrain
École Doctorale 564 : Physique en Île-de-France

présentée par

Raphaël Proux

Pour obtenir le titre de
Docteur de l'École Normale Supérieure

Sujet de la thèse :

Indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation résonnante continue

Soutenue le 26 novembre 2015 devant le jury composé de :

Mme	Carole Diederichs	Membre invité
M.	Jean-Michel Gérard	Rapporteur
M.	Jakob Reichel	Examinateur
M.	Philippe Roussignol	Directeur de thèse
M.	Maurice Skolnick	Examinateur
M.	Bernhard Urbaszek	Rapporteur

Sommaire

Introduction **13**

1 Boîtes quantiques – modèle du système à deux niveaux **19**
1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques 20
1.1.1 Potentiel cristallin et notion de bande 20
1.1.2 Effets du confinement 20
1.2 Fabrication et principales caractéristiques des boîtes 21
1.2.1 Fabrication 21
1.2.2 Structure des niveaux d'énergie 24
1.2.3 Excitons dans les boîtes 26
1.3 Mécanismes de relaxation, modèle du système à deux niveaux 27
1.3.1 Mécanismes de relaxation 27
1.3.2 Excitation résonnante et modèle du système à deux niveaux 29
1.4 Excitation résonnante : une approche théorique 31
1.4.1 Modèle semi-classique 31
1.4.2 Signification de T_1 et T_2 – limite radiative 32
1.4.3 Référentiel tournant du laser et solutions en régime stationnaire . . . 34
1.4.4 Lien entre le champ rayonné et le dipôle émetteur 35
1.4.5 Intensité et largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation . . 36
1.4.6 Diffusions élastique et inélastique 38
Conclusion du chapitre 41

2 Montage de microphotoluminescence et d'excitation résonnante **43**
2.1 Montage de microphotoluminescence 44
2.1.1 Description générale 44
2.1.2 Détails techniques généraux 44
2.1.3 Microscope confocal 49
2.2 Dispositif d'excitation résonnante 52
2.2.1 Échantillon en microcavité planaire 54
2.2.2 Pourquoi utiliser une microcavité ? 60
2.3 Mesures de caractérisation 62
2.3.1 Système d'imagerie de l'échantillon 62
2.3.2 Mesure de réflectivité 63
2.3.3 Spectre de photoluminescence 64
2.3.4 Spectre d'excitation de la photoluminescence 66
2.3.5 Mesure de temps de vie 71
Conclusion du chapitre 74

3 Autocorrélation en champ et en intensité **75**
3.1 Fonctions de corrélation du champ . . . 76
3.1.1 Définitions . . . 76
3.1.2 Passage entre le référentiel du laboratoire et le référentiel tournant du laser . . . 77
3.2 Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$ . . . 78
3.2.1 $g^{(1)}(\tau)$ pour l'émission de la boîte seule . . . 78
3.2.2 $g^{(1)}(\tau)$ en ajoutant un champ laser diffusé . . . 80
3.2.3 Interféromètre de Michelson . . . 80
3.2.4 Théorème de Wiener-Khintchine . . . 82
3.2.5 Techniques de mesure . . . 82
3.2.6 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ . . . 84
3.3 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$ . . . 89
3.3.1 Lumière dégroupée . . . 89
3.3.2 Passage dans le référentiel tournant du laser . . . 90
3.3.3 $g^{(2)}(\tau)$ de l'émission de la boîte seule . . . 91
3.3.4 $g^{(2)}(\tau)$ en ajoutant un champ laser diffusé . . . 92
3.3.5 Interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss . . . 94
3.3.6 Comment se construit une mesure de corrélation de photons ? . . . 95
3.3.7 Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ . . . 98
3.4 Effets d'un filtrage spectral sur le dégroupement des photons . . . 101
3.4.1 Diffusion des photons du laser par le système à deux niveaux . . . 101
3.4.2 Mesures à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot . . . 105
Conclusion du chapitre . . . 109

4 Interféromètre de HOM, indiscernabilité des photons **111**
4.1 Interférences à deux photons . . . 112
4.1.1 Expériences historiques et interprétation qualitative . . . 112
4.1.2 Principes généraux . . . 114
4.1.3 Interférences à deux photons sur une séparatrice . . . 115
4.1.4 Prise en compte de la séparation temporelle . . . 118
4.2 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel avec un émetteur unique . . . 120
4.2.1 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel . . . 120
4.2.2 Propagation du champ source dans l'interféromètre . . . 121
4.2.3 Corrélations en intensité — développement . . . 123
4.2.4 Corrélations en intensité — interprétation . . . 126
4.2.5 Mesures d'indiscernabilité en excitation impulsionnelle et en excitation continue . . . 129
4.2.6 Visibilité des interférences à deux photons et temps moyen de coalescence . . . 132
4.2.7 Fenêtre temporelle de coalescence . . . 133
4.3 Étude expérimentale de l'indiscernabilité . . . 134
4.3.1 Description de l'expérience . . . 135
4.3.2 Étude en fonction de la puissance d'excitation . . . 137
4.3.3 Étude en fonction de la cohérence du laser d'excitation . . . 141

4.3.4 Ajout d'un fond parasite cohérent 144
Conclusion du chapitre 146

5 Calcul général des corrélateurs et effet du fond parasite 147
5.1 Méthode générale de calcul d'un corrélateur à l'aide des superopérateurs . . 148
5.1.1 Équation d'évolution 148
5.1.2 Diagonalisation du liouvillien 149
5.1.3 Superopérateur d'évolution 149
5.1.4 Corrélateur 150
5.1.5 Opérateurs dipolaires 151
5.1.6 Corrélateurs usuels 152
5.2 Expression de $g^{(2)}(\tau)$ avec fond laser 153
5.2.1 Modèle du diffuseur élastique 153
5.2.2 Confrontation aux mesures 154
5.2.3 Analyse du comportement des termes parasites 156
5.2.4 Amplitude du champ parasite, désaccord avec les mesures de PLE et limites du modèle 162
5.3 Mesures d'indiscernabilité en présence d'un fond laser parasite 164
5.3.1 Étude en fonction de la puissance d'excitation 165
5.3.2 Étude en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation 171
Conclusion du chapitre 173

Conclusion 175

A À propos du contrôle de la cohérence du laser d'excitation 177
A.1 Cohérence d'un laser modulé avec un bruit blanc limité en bande passante . 177
A.2 Mesure de la cohérence du laser modulé 179

Bibliographie 183

Table des figures

1.1 Différents types de confinement et densités d'états associées. 21
1.2 Étapes de fabrication de boîtes quantiques par la méthode SK. 23
1.3 Images de boîtes quantiques en InAs formés par épitaxie. 23
1.4 Allure des niveaux d'énergie pour une boîte quantique épitaxiée. 24
1.5 Allure de la densité d'états électronique dans une boîte quantique épitaxiée. . 25
1.6 Spectre d'absorption théorique d'une boîte quantique. 25
1.7 Rétrécissement de la raie de photoluminescence en fonction de l'énergie d'excitation. 30
1.8 Modèle du système à deux niveaux. 30
1.9 Spectres de PLE résonnante calculés à différentes puissances d'excitation. . . 37
1.10 Intensité et largeur à mi-hauteur de la PLE résonnante calculée en fonction de la puissance. 37
1.11 Intensités diffusées élastiquement et inélastiquement, en fonction de la puissance. 40
1.12 Diffusion élastique en fonction de $\frac{T_2}{2T_1}$. 40

2.1 Schéma de principe du montage de microphotoluminescence. 44
2.2 Schéma de l'autocorrélateur. 47
2.3 Schéma optique d'un microscope confocal. 49
2.4 Estimation du volume confocal. 50
2.5 Schéma du couplage dans la fibre. 52
2.6 Montage d'excitation résonnante. 53
2.7 Schéma de principe du montage d'excitation résonnante. 53
2.8 Structure de l'échantillon A. 55
2.9 Calcul de la réflectivité de la cavité en fonction de l'énergie. 56
2.10 Calcul de l'intensité transmise par la cavité. 57
2.11 Échantillon B observé au MEB. 59
2.12 Propagation du laser d'excitation dans l'échantillon. 60
2.13 Intensité transmise par la cavité vers l'objectif et vers le substrat. 61
2.14 Schéma du montage d'illumination et de visualisation de l'échantillon. 63
2.15 Mesure de la réflectivité de l'échantillon. 64
2.16 Schéma du spectromètre. 65
2.17 Spectres de photoluminescence. 66
2.18 Spectres de PLE non-résonnante. 68
2.19 Spectres de PLE résonnante. 69
2.20 Mesures de polarisation de la photoluminescence. 70

2.21 Mesure de la courbe de saturation. 71
2.22 Montage de mesure de temps de vie. 72
2.23 Mesures de temps de vie. 73

3.1 Schéma d'un interféromètre de Michelson. 81
3.2 Schéma de l'interféromètre de Mach-Zehnder replié. 83
3.3 Principe de la mesure du contraste. 83
3.4 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation. 85
3.5 Spectres de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation. 88
3.6 Exemples de distribution des photons. 89
3.7 Allure théorique de $g^{(2)}(\tau)$ d'un système à deux niveaux. 92
3.8 Mesure de $g^{(2)}(\tau)$ à très haute puissance. 93
3.9 Schéma d'un interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss. 94
3.10 Principe d'une mesure de corrélation de photons. 96
3.11 Réponse impulsionnelle (IRF, pour *Instrument Response Function*) du système de mesure de corrélation de photons. 98
3.12 Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation. 100
3.13 Représentation diagrammatique de l'état après diffusion des photons par le système à deux niveaux. 103
3.14 Diagrammes des processus de diffusion du premier ordre des photons. 103
3.15 Processus résonnants de diffusion du deuxième ordre. 104
3.16 Spectres de PL résonnante mesurés avec l'interféromètre de Fabry–Pérot. . . . 106
3.17 Montage de filtrage de la composante élastique à l'aide du Fabry–Pérot. . . . 107
3.18 Mesures de corrélations en intensité avec ou sans la composante de diffusion élastique. 108

4.1 Schéma du montage expérimental de Pfleegor et Mandel (1967). 113
4.2 Schéma de principe des interférences à deux photons dans le cas général. . . 114
4.3 Schéma d'une séparatrice combinant deux sources indépendantes. 116
4.4 Schéma d'une séparatrice combinant deux sources indépendantes et mesure de corrélation de l'intensité. 118
4.5 $g^{(2X)}(\tau)$ pour différentes situations et différents types de sources. 119
4.6 Schéma de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel. 121
4.7 Développement de $G^{(2X)}(\tau)$. 124
4.8 Courbes théoriques de $g^{(2X)}(\tau)$ pour une boîte quantique. 127
4.9 Interféromètre de HOM pour l'excitation impulsionnelle. 130
4.10 Mesure d'interférences à deux photons sous excitation impulsionnelle. 130
4.11 Interféromètre de HOM pour l'excitation continue. 131
4.12 Mesure d'interférences à deux photons sous excitation continue. 132
4.13 Courbes théoriques de visibilité des interférences à deux photons. 132
4.14 Schéma du montage de l'interféromètre de HOM. 135
4.15 Contraste des franges d'interférences en fonction de T_L. 136
4.16 Mesures de HOM pour différentes puissances d'excitation. 138
4.17 Valeurs de $V_{HOM}(\tau = 0)$ en fonction de la puissance d'excitation. 140
4.18 FTC en fonction de la puissance d'excitation. 141

4.19 Mesures de HOM pour différents temps de cohérence T_L du laser d'excitation. 143
4.20 Valeurs de $V_{HOM}(\tau = 0)$ en fonction de T_L. 144
4.21 FTC en fonction de T_L. 145

5.1 Modèle du diffuseur élastique du champ parasite. 154
5.2 Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ à toutes les puissances. 156
5.3 Comportement des termes de $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de τ. 158
5.4 Comportement des termes de $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation. 160
5.5 Estimation du fond parasite à partir du spectre de PLE résonnante. 163
5.6 Mesures de HOM pour différentes puissances d'excitation avec prise en compte du fond parasite. 166
5.7 FTC en fonction de la puissance d'excitation avec prise en compte du fond parasite. 167
5.8 Comparaison des ajustements avec et sans fond laser. 168
5.9 Comportement théorique de la FTC en fonction de la puissance. 170
5.10 Mesures de HOM pour différentes valeurs de T_L avec prise en compte du fond parasite. 171
5.11 FTC en fonction de T_L avec prise en compte du fond parasite. 172

A.1 Spectre du courant de modulation débité par le module LCC. 179
A.2 Mesure d'autocorrélation de l'intensité émise par la diode laser modulée avec le module LCC. 180
A.3 Mesure de HOM pour le laser seul. 181
A.4 Mesure du temps de cohérence du laser pour différentes atténuations du LCC. 181

Remerciements

Mes remerciements les plus profonds et sincères s'adressent à tous ceux qui m'ont soutenu au cours de cette thèse.

Maria Maragkou et Carole Diederichs, deux chercheuses extraordinaires, ont dirigé ma thèse au jour le jour et m'ont énormément appris. J'ai eu la chance et l'immense plaisir de travailler dans une atmosphère de confiance et d'intégrité. Des journées passées à dompter le montage, dans la bonne humeur, l'agacement, la patience, le désespoir, à des horaires variables, souvent dans le noir, pestant contre le laser, cherchant des boîtes quantiques à l'aide de cartes au trésor, luttant pour les photons, démontant, remontant l'interféromètre, interprétant les mesures, dégageant des idées, des hypothèses, et la joie d'obtenir finalement les résultats. Je ne pouvais pas rêver meilleure équipe. Philippe Roussignol m'a fait l'honneur d'être mon directeur de thèse, physicien et expérimentateur aguerri dont j'apprécie énormément l'humour et le discours sincère et direct. Emmanuel Baudin, toujours partant pour une discussion débridée et sans qui une grande partie de ce travail n'aurait pas été possible, m'a beaucoup aidé grâce à son savoir et son sens théorique acéré. Christophe Voisin a suivi ma thèse de plus loin mais son recul et son aide ont été particulièrement précieux pour préparer ma soutenance. Enfin, Jean-Marc Berroir, directeur du Laboratoire Pierre Aigrain, m'a accueilli en tant que doctorant dans la grande famille du LPA et je lui suis très reconnaissant pour son soutien et la bonne ambiance qu'il a participé à entretenir.

Merci également à nos collaborateurs de l'INSP, Valia Voliotis, Richard Hostein, Roger Grousson, Léonard Monniello et Antoine Reigue, avec qui nous avons partagé dans la bonne humeur de longs moments de casse-tête sur les structures d'échantillon, en compagnie d'Aristide Lemaître et d'Anthony Martinez du LPN.

De sincères remerciements aux membres de mon jury, dont la plupart se sont déplacés de loin. J'ai eu l'honneur d'être évalué par Jean-Michel Gérard, Jakob Reichel, Maurice Skolnick et Bernhard Urbaszek, ainsi que par Philippe Roussignol et Carole Diederichs qui ont dirigé ces travaux.

De grands et affectueux remerciements au groupe d'optique qui m'a accueilli avec chaleur. Combien de repas avons-nous partagé, ponctués d'anecdotes et de débats politiques voire philosophiques, voire pas du tout — c'était du goudron dans cette enceinte ?! Je connais maintenant Zürich sans y avoir jamais été, et je précise que je n'ai jamais dit que Gravity était un mauvais film ! Enfin bref ça ne sert à rien de s'acharner quand on a affaire à Adrien et Ombline, de vraies têtes de mule — contrairement à moi, qui suis un modèle de souplesse d'esprit, toujours prêt à accepter le point de vue de l'autre. Une fois qu'il est d'accord avec moi, bien entendu. En tous cas merci à ces deux adorables abominables homme/femme des labos. Oui. Oui ce pull est génial... Merci aussi à Simon et nos discussions sur le Pérok, et bien sûr aux anciens doctorants, maintenant docteurs, que sont Benjamin et Fabien, toujours partants pour une petite bière ! Des remerciements aussi à la nouvelle génération, qu'ils soient ou aient été

stagiaires ou thésards, merci beaucoup à Tom Carnaut, Christophe Raynaud et Matteo Mantica. Qu'ils restent ou pas dans le labo, ils perpétuent la tradition de bonne entente, d'humour et de savoir-vivre de ce groupe. Merci également aux permanents que je n'ai pas encore cités. Yannick Chassagneux, grâce à qui j'ai arrêté de mettre de l'huile dans l'eau des pâtes (c'est pas rien) mais aussi expérimentateur redoutable fourmillant de bonnes idées. Gabriel Hetet que j'ai eu le plaisir de recevoir chez moi à diverses occasions, toujours partant et de bonne humeur ; j'ai beaucoup aimé nos discussions parfois assez fondamentales sur les manips et son intérêt pour mon travail en général. Merci aussi à Claude Delalande qui m'a aidé à préparer ma soutenance de thèse et enfin, pour m'avoir aidé dans ma recherche de post-doc, à Christos Flytzanis dont j'ai pu apprécier la connaissance du Canada et à Robson Ferreira pour son éclairage brésilien.

Également, je tiens à remercier le groupe térahertz et le groupe théorique du LPA, parmi lesquels les amis du fameux, du grandiose, du magnifique couloir du grand hall. J'ai bien tenté d'en embrigader quelques-uns dans mon Federal Labo of Investigation mais mes tentatives ont hélas fait long feu. Le département BTFC doit d'ailleurs enquêter à ce sujet. Matthieu, avec nos conversations, scientifiques ou pas, nos blagues, nos références croisées, un bon partenaire de bureau dans l'écoute, le partage et un ami cher. Pierrick que j'espère ne pas avoir trop ennuyé pendant sa rédaction, ainsi que Feihu qui nous a supporté pendant deux ans avec gentillesse, mais aussi avec un sarcasme qui m'a souvent fait rire... n'est-ce pas, Matthieu ? Sarah, Armand et Anaïs que j'aimais bien embêter en discutant pendant mes pauses, parfois en faisant de traumatisants dessins sur le tableau — je vous jure que c'était une tarte aux fraises !! Merci aussi à Camille, Simon et Jean qui les ont précédés dans le même bureau et que j'ai l'occasion de revoir avec plaisir, à Cécile et ses chats pitres, très bon public pour les blagues de très (très) haute volée du bureau d'en face, à Antoine et son humour caustique, qui a été le premier avec qui j'ai partagé un bureau au LPA, à Udson, fan de café, brésilien comme moi — quel plaisir de parler portugais au labo —, à Laure avec qui Matthieu et moi avons pu partager certains moments de désespoir de rédaction, et au groupe de surfaces moléculaires organisées (il en jette, ce nom !) du LPS, en particulier à Benjamin, Isabelle et Claire. Enfin, je veux bien sûr remercier tous les permanents, post-docs, doctorants et stagiaires du LPA que je n'ai pas pu citer mais qui participent tous à affirmer une certaine idée du laboratoire et de la recherche et ont ainsi participé indirectement à la réussite de cette thèse.

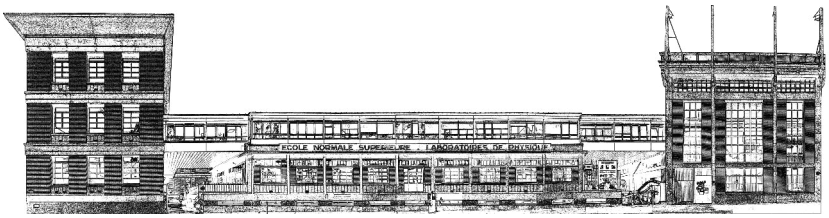
Un grand, un immense, un gigantesque merci à tous les membres du personnel d'encadrement. Merci tout d'abord à Fabienne Renia et Anne Matignon, en charge de la plupart des aspects administratifs du LPA. Je veux souligner votre humanité et votre gentillesse à l'égard des doctorants, ainsi que votre efficacité au service du labo, des qualités qui nous permettent de rester sereins et focalisés sur la recherche. Quelle chance ! Mes profonds remerciements aussi au personnel technique. En cryogénie, Olivier Andrieu, Aurélien Sabatie et, plus anciennement, François-René Ladan ont toujours été ultra-réactifs et compréhensifs à notre

soif insatiable d'hélium liquide, même lorsqu'il n'y en avait pas. Mais quel est votre secret ? Personnellement je n'ai presque jamais souffert de pénurie. En mécanique, Jules Silembo est si efficace que j'avais toujours les pièces avant la date prévue, avec un travail de très haute qualité. Je pense que l'une de ses machines sert aussi à voyager dans le temps, c'est l'explication la plus probable. Je remercie aussi Mathieu Sardin, tout aussi efficace et sympathique, ainsi que Jack Olejnik et Pascal Morfin qui ont conçu l'extension du cryostat que j'ai utilisé tout au long de ma thèse. En électronique, David Darson, Anne Denis et Philippe Pace m'ont toujours accueilli avec enthousiasme et j'ai passé de très bons moments avec eux, à discuter de problèmes scientifiques ou pas, du Brésil ou de l'Écosse, d'astronomie. Anne Denis a notamment conçu et fabriqué un module de comptage de photons des plus pratiques, et a beaucoup travaillé sur une caméra qui sera certainement utile à mon successeur. Enfin, en informatique, j'aimerais remercier Yann Colin qui m'a souvent sorti de mon pétrin en allant chercher une potion magique de sauvegarde ou grâce à un sort de déverrouillage d'ordinateur. Il y a énormément de personnel impliqué dans la bonne marche du laboratoire et je ne peux malheureusement pas citer tout le monde, mais je remercie toutes ces personnes qui apportent leurs compétences et leur qualité au service de la recherche et la rendent tout simplement possible.

Pour achever ces remerciements, j'aimerais les élargir à l'ensemble de mes professeurs passés, mes amis de tous les horizons, ma famille française et brésilienne, mes frères, mon oncle, mes tantes, mes cousins, mes parents, mes aïeux. Tous ceux qui m'ont soutenu, qui ont fait et font de moi qui je suis.

C'est donc la fin, j'ai « cette illusion de pouvoir ne jamais oublier ». Au-delà du temps se trouve un monde sans centre ni contours, sans ordre précis, où s'ajoutent indéfiniment nos perceptions, nos sensations, nos sentiments, où se perdent et se mélangent nos familles, nos parents, nos proches, nos amis, nos amours présents et passés, les disparus, les oubliés. Un monde humain, fait de personnes, de leur image, un monde passionnant, bourdonnant, vivant. C'est ce monde qui me donne un sens : c'est à travers vous tous que je vis et, pour cela, je vous remercie.

Au moment d'achever ces lignes, je suis à Édimbourg.
Au travers des nuages lourds, le soleil me fait signe.
Estou com saudade.



Introduction

Les premières boîtes quantiques semiconductrices ont été fabriquées dans les années 1980. Du fait de leur taille nanométrique, elles constituent un piège tridimensionnel pour les porteurs de charge que sont les électrons et les trous. Elles peuvent être fabriquées par synthèse chimique, dans une solution, ou par épitaxie, c'est-à-dire par croissance d'un cristal sur un substrat. Le confinement quantique dans une telle structure nanométrique provoque une discrétisation des niveaux d'énergie qui dépend de la taille de la boîte et des matériaux utilisés. Lorsqu'une paire électron–trou piégée dans la structure se recombine en émettant un photon, celui-ci ne peut donc prendre que des valeurs discrètes d'énergie : le spectre d'émission présentera alors des raies, à la manière des spectres atomiques. Ces caractéristiques confèrent aux boîtes quantiques l'appellation d'atomes artificiels.

Les travaux de Michler *et al.* [Michler *et al.* 2000] ont démontré expérimentalement que les boîtes quantiques étaient des sources de photons uniques, ce qui signifie qu'elles n'émettent jamais plus d'un photon à la fois. En cela, elles rejoignent les atomes [Kimble *et al.* 1977], les ions piégés [Diedrich & Walther 1987] et les molécules [Basché *et al.* 1992], mais aussi d'autres sources à l'état solide telles que les centres colorés du diamant comme les centres NV [Jelezko & Wrachtrup 2006 ; Kurtsiefer *et al.* 2000 ; Zaitsev 2001] ou encore les nanotubes de carbone [Högele *et al.* 2008]. Bien que tous ces émetteurs soient prometteurs, l'un des avantages des boîtes quantiques est que leurs propriétés d'émission sont ajustables à la fabrication en contrôlant leur taille et les matériaux utilisés. Dans la perspective d'applications à long terme, cela permettrait d'adapter leur longueur d'onde d'émission aux sources et aux détecteurs là où ils sont les plus efficaces, mais également d'envisager le multiplexage de plusieurs canaux à différentes longueurs d'onde, à la manière de ce qui existe déjà dans les télécommunications, par exemple, si l'on imagine un réseau d'information quantique. De manière générale, l'utilisation de sources de photons uniques est envisagée notamment pour les circuits de calcul quantique [Knill *et al.* 2001 ; Santori, Fattal & Yamamoto 2010] préfigurant l'ordinateur quantique, mais aussi en cryptographie quantique [C. H. Bennett *et al.* 1992 ; Ekert *et al.* 1992 ; Fox 2006 ; Gisin *et al.* 2002] où elles éliminent pratiquement le risque d'interception d'un message.

Cependant, disposer d'une source de photons uniques ne suffit pas. En cryptographie quantique, par exemple, la plupart des schémas expérimentaux nécessitent l'utilisation de photons indiscernables, et parfois intriqués. Or l'indiscernabilité

est profondément liée à la notion de cohérence [Mandel 1991]. Dans une boîte quantique, lorsqu'une paire électron–trou se trouvant sur deux niveaux discrets se recombine en émettant un photon, cela induit une relaxation de la cohérence du dipôle associé à cette transition. Cependant, la boîte quantique est fortement couplée à son environnement électrostatique et mécanique (phonons) qui est une source de décohérence par déphasage pur, c'est-à-dire sans perte d'énergie. La relaxation de la cohérence est donc due à deux processus concurrents : les recombinaisons radiatives et le déphasage pur. Lorsque les recombinaisons radiatives sont les seules sources de relaxation, le système est dit à la limite radiative et on obtient alors les meilleures propriétés de cohérence et d'indiscernabilité des photons émis.

Dès lors, pour se rapprocher de la limite radiative, deux leviers sont à la disposition de l'expérimentateur : d'une part, augmenter le taux de relaxation radiative, d'autre part, diminuer le taux de déphasage pur. Pour augmenter le couplage radiatif, on peut avoir recourt à l'effet Purcell [Vahala 2003] en plaçant la boîte quantique dans une cavité, par exemple en micropilier [Gérard, Sermage *et al.* 1998] ou dans un cristal photonique [Lodahl *et al.* 2004]. Le taux de recombinaison radiative est alors accru et l'émission dirigée par les modes de cavité, ce qui conduit également à des sources plus brillantes [Gazzano *et al.* 2013]. Pour diminuer le taux de déphasage pur, le principe est d'exciter la boîte quantique de manière à minimiser les perturbations de son environnement. Dans la très grande majorité des cas, une boîte quantique est excitée en créant de multiples paires électron–trou à haute énergie dans son voisinage, certaines pouvant rester piégées dans la boîte quantique. Cela crée un environnement électrostatique fluctuant, source de déphasage pur. L'excitation résonnante consiste à utiliser un laser d'excitation qui est exactement à la même longueur d'onde que l'émission de la boîte quantique. Les charges sont ainsi directement créées dans le niveau de plus basse énergie et l'excitation a très peu d'effet sur l'environnement.

Cependant, l'excitation résonnante est difficile expérimentalement car la puissance du laser diffusée vers le système de détection peut être 8 ordres de grandeurs plus grande que l'émission de la boîte quantique. Deux techniques permettent de résoudre ce problème : le filtrage spatial où les axes d'excitation et de détection sont orthogonaux et le filtrage en polarisation où les polarisations d'excitation et de détection sont orthogonales, sachant que les deux techniques peuvent parfois être combinées. Les premiers résultats obtenus en excitant une boîte quantique à la résonance utilisaient le filtrage spatial. On peut citer les travaux de A. Muller, C. K. Shih *et al.* [Muller *et al.* 2007], de V. Voliotis, R. Grousson *et al.* [Melet *et al.* 2008] sur les oscillations de Rabi en régime impulsionnel, ainsi que P. Michler *et al.* [Ates *et al.* 2009], M. S. Skolnick, A. M. Fox *et al.* [Makhonin *et al.* 2014] et les travaux de notre propre groupe [Nguyen *et al.* 2012, 2011]. Les travaux d'A. Imamoğlu *et al.* [Latta *et al.* 2009], M. Atatüre *et al.* [Nick Vamivakas *et al.* 2009] et B. Gerardot *et al.* [Malein *et al.* 2015] utilisent plutôt le filtrage en polarisation. Ces travaux tendent en général à montrer des temps de cohérence plus grands que ceux observés sous

excitation non-résonnante et un comportement de la boîte assimilable à celui d'un système à deux niveaux avec, par exemple, l'observation d'oscillations de Rabi.

La génération de photons indiscernables par des boîtes quantiques est un objectif de longue date [Santori, Fattal, Vučković *et al.* 2002]. Parmi les travaux cités au paragraphe précédent, nombre s'y rapportent déjà. L'indiscernabilité des photons est mesurée en exploitant un phénomène d'interférence à deux photons appelé *coalescence* : deux photons parfaitement indiscernables arrivant de part et d'autre d'une lame séparatrice repartent ensemble. Il ne s'agit pas d'une interaction entre les photons comme lorsque l'on parle de coalescence de gouttes d'eau, mais d'un phénomène d'interférences entre les amplitudes à deux photons traversant une lame séparatrice. Comme les photons indiscernables ne repartent donc jamais chacun de leur côté, détecter la coalescence revient à détecter l'absence de coïncidences de détections entre les deux sorties de la lame séparatrice. Le montage expérimental utilisé est appelé interféromètre de Hong–Ou–Mandel, en référence aux travaux en optique quantique de ces trois chercheurs dans les années 1980, qui ont mesuré cet effet d'anticoïncidences de manière univoque pour la première fois en 1987 [Hong *et al.* 1987]. Les photons utilisés pour ces travaux étaient alors obtenus par diffusion paramétrique avec un cristal non-linéaire.

La majorité des travaux consacrés à l'indiscernabilité des photons émis par des boîtes quantiques sont effectués dans le régime d'excitation impulsionnel. Avec une source impulsionnelle, le phénomène de coalescence sera observé en superposant parfaitement deux impulsions successives. Toutefois, le déphasage pur introduit une gigue sur l'énergie des photons émis, ce qui limite la visibilité de la coalescence au rapport entre le taux de relaxation de l'énergie et le taux de relaxation de la cohérence [Bylander *et al.* 2003]. Autrement dit, si le système n'est pas à la limite radiative, les photons ne seront pas parfaitement indiscernables d'une impulsion à l'autre et le nombre de coïncidences ne sera pas nul à la sortie de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel. En excitation impulsionnelle, l'indiscernabilité des photons est donc complètement liée à la qualité de l'émetteur.

Les quelques travaux effectués en régime continu, à résonance [Ates *et al.* 2009] ou non [Patel, A. J. Bennett, Cooper *et al.* 2008 ; Patel, A. J. Bennett, Farrer *et al.* 2010] soulèvent des questions sur la notion d'indiscernabilité quand on utilise une source continue qui n'ont pas été traitées clairement dans la littérature. Si l'on se réfère à ce qui est fait sous excitation impulsionnelle, l'indiscernabilité est liée au nombre d'anticoïncidences observées par le système de détection. En réalité, avec une source continue, le taux de coïncidence s'annule toujours en théorie, même pour des photons ayant a priori des propriétés très différentes. C'est en fait la résolution temporelle des détecteurs qui dégrade la visibilité des interférences et augmente ainsi le taux de coïncidences. L'objectif de cette thèse est d'étudier les propriétés d'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation continue et résonnante. Comme nous le verrons, la valeur du taux de coïncidences ne décrit

pas correctement les mesures ni une quelconque propriété de l'émetteur. Nous introduirons pour cela une caractéristique quantitative, appelée fenêtre temporelle de coalescence (FTC), permettant d'évaluer la durée moyenne séparant deux photons pour laquelle un phénomène de coalescence est observé. La FTC nous permettra de décrire fidèlement le comportement complexe de l'indiscernabilité des photons émis sous excitation résonnante continue.

Le premier chapitre exposera quelques propriétés générales des boîtes quantiques de semiconducteur, d'intérêt pour cette thèse, puis le socle théorique que constitue le modèle du système à deux niveaux couplé au champ électromagnétique dans l'approche semi-classique. Ce modèle permet en particulier de prévoir certains comportements comme le régime dit de diffusion Rayleigh, à basse puissance d'excitation, lorsque le système à deux niveaux a une réponse en puissance linéaire. Si la boîte quantique est bien isolée de son environnement mécanique et électrostatique, les photons émis seront alors diffusés élastiquement, c'est-à-dire qu'ils auront un temps de cohérence égal à celui du laser d'excitation, qui peut être bien plus long que le temps de cohérence obtenu par pompage non-résonnant. Il est de plus remarquable que ce phénomène n'affecte pas le caractère d'émetteur de photons uniques de la boîte quantique [Nguyen *et al.* 2011].

Le deuxième chapitre est consacré à la majorité des techniques expérimentales utilisées pour cette thèse, comme le montage de microphotoluminescence permettant l'observation de l'émission d'une boîte quantique unique, mais plus particulièrement le montage permettant d'exciter la boîte à résonance avec le système à deux niveaux, permettant d'améliorer considérablement les propriétés de cohérence des photons émis. Pour l'essentiel, l'idée consiste à séparer très efficacement le mode d'excitation du mode collecté par le système de détection. Dans notre cas, nous excitons les boîtes quantiques et collectons le signal émis suivant des axes orthogonaux. Nous utilisons de plus un échantillon structuré en micro-cavité planaire, qui guide le laser d'excitation jusqu'à la boîte quantique étudiée et redirige le signal émis vers le système de détection.

Le troisième chapitre se concentre sur les mesures de corrélation. La mesure de la cohérence passe par la mesure de fonctions de corrélation du champ. Ainsi la fonction de corrélation du premier ordre, et plus précisément la fonction d'autocorrélation du champ $g^{(1)}(\tau)$, est mesurée avec le contraste des franges d'un interférogramme établi à l'aide d'un interféromètre de Michelson. Elle permet de connaître le temps de cohérence d'une source, par exemple, et de mesurer un spectre de photoluminescence grâce à la spectroscopie par transformée de Fourier. Nous nous en servirons pour observer les oscillations de Rabi lorsque le système est excité à haute puissance, mais surtout la montée de la composante de diffusion élastique par le système à deux niveaux, lorsque la puissance diminue. Ces mesures permettront également d'estimer les temps caractéristiques T_1 et T_2 de la boîte quantique étudiée. Les autres mesures

de corrélation qui nous intéresseront sont les mesures d'autocorrélation de l'intensité $g^{(2)}(\tau)$, effectuées à l'aide d'un interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss (HBT), qui consiste à séparer le faisceau en deux avec une lame séparatrice et à mesurer les corrélations en intensité entre les deux faisceaux émergents à l'aide de détecteurs rapides et d'une carte de corrélations électronique. Cette fonction d'autocorrélation de l'intensité permet de connaître la statistique des photons et de déterminer par exemple s'il s'agit d'une source de photons uniques.

Le quatrième chapitre traite des mesures d'indiscernabilité. Nous nous pencherons sur le phénomène de coalescence et plus largement sur les interférences à deux photons. Le montage expérimental, appelé interféromètre de Hong–Ou–Mandel, permettra de mesurer la fonction de corrélation de l'intensité appelée $g^{(2X)}(\tau)$, dans laquelle nous verrons un creux d'anticoïncidences lié à la coalescence. L'amplitude du creux est fortement affectée par la résolution temporelle des détecteurs, mais cela n'empêche pas l'étude de certaines caractéristiques comme sa largeur, en particulier dans le régime de diffusion Rayleigh où l'on peut distinguer les temps de cohérence du laser d'excitation et le temps de cohérence intrinsèque de la boîte quantique. Après une comparaison entre l'indiscernabilité en excitation impulsionnelle et continue, la fenêtre temporelle de coalescence sera introduite et utilisée pour caractériser nos mesures, démontrant ainsi sa capacité à décrire fidèlement les données expérimentales et à quantifier l'indiscernabilité des photons pour une source continue.

Le cinquième et dernier chapitre se consacre à une autre problématique spécifique de l'excitation résonnante : la présence d'un fond parasite, résiduel du laser d'excitation malgré le filtrage spatial ou de polarisation. Certaines mesures, en particulier les spectres d'excitation ou la fonction d'autocorrélation du champ $g^{(1)}(\tau)$, présentent des fonds parfois très importants mais relativement constants, et d'autres mesures comme, en particulier, la fonction d'autocorrélation de l'intensité $g^{(2)}(\tau)$ montrent des comportements qui ne peuvent être expliqués qu'en ajoutant des termes d'interférences entre un fond parasite et l'émission de la boîte quantique. Dans ce chapitre, nous développerons un modèle permettant de calculer ces termes et confrontons les résultats aux mesures. Ce travail démontrera que le fond peut jouer un rôle non négligeable, en particulier à haute puissance d'excitation.

1 Boîtes quantiques – modèle du système à deux niveaux

Les boîtes quantiques confinent les porteurs de charge dans les trois dimensions de l'espace. Pour l'optique, elles sont en général produites en insérant un cristal de semiconducteur de faible bande interdite (gap) dans un semiconducteur à plus grand gap ou dans un isolant (solution, matrice vitreuse, air, vide). Le semiconducteur de faible gap constitue alors un piège pour les électrons et les trous. Lorsque ce cristal atteint des tailles nanométriques, le confinement impose une quantification des niveaux d'énergie de la paire électron–trou piégée dans la boîte. Cette structure émet alors de la lumière caractérisée par des raies spectrales discrètes, à la manière des spectres atomiques, qui lui valent le surnom d'atome artificiel.

Un tel objet reste cependant à l'état solide, il est couplé à son environnement et affecté, entre autres, par le bain de phonons du réseau cristallin qui le constitue et par son environnement électrostatique. Les effets de ce couplage dépendent de la température, des impuretés et des défauts inhérents à la fabrication. Si cet environnement est essentiel pour permettre le piégeage des charges et la relaxation de leur énergie au sein de la boîte quantique, il est également responsable de la dégradation des qualités de cohérence des photons émis. La limitation de ces effets pour atteindre les meilleures performances de cohérence et d'indiscernabilité des photons est indispensable pour songer à utiliser ces émetteurs en optique quantique.

Par conséquent, le système est étudié à des températures cryogéniques et les boîtes sont excitées optiquement, en accordant le laser d'excitation à résonance avec leurs niveaux de plus basse énergie. Dans ces conditions, le comportement de la boîte quantique peut être décrit par le modèle du système à deux niveaux, qui constitue le socle théorique à partir duquel nous allons développer les expériences présentées dans les chapitres suivants. Ce modèle définit notamment, à basse puissance d'excitation, le régime de diffusion Rayleigh dans lequel les photons du laser d'excitation sont diffusés élastiquement et peuvent avoir des temps de cohérence très longs.

1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques 20
1.2 Fabrication et principales caractéristiques des boîtes 21
1.3 Mécanismes de relaxation, modèle du système à deux niveaux 27
1.4 Excitation résonnante : une approche théorique 31
Conclusion du chapitre 41

1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques

1.1.1 Potentiel cristallin et notion de bande

Pour déterminer la structure des niveaux d'énergie d'un électron dans un cristal, on résout l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$H\psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \tag{1.1.1}$$

où ψ est la fonction d'onde de l'électron dans le cristal et H est l'hamiltonien :

$$H = \frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \tag{1.1.2}$$

avec $V(\vec{r})$ le potentiel d'interaction entre l'électron et le cristal. Du fait de la structure périodique du cristal, le théorème de Bloch établit que les fonctions d'onde peuvent se mettre sous la forme :

$$\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n,\vec{k}}(\vec{r})\ \mathrm{e}^{\mathrm{i}\vec{k}\cdot\vec{r}} \tag{1.1.3}$$

où $\vec{k}$ est un vecteur d'onde, souvent appelé moment cristallin, n est l'indice de bande. Les valeurs propres $E_n(\vec{k})$ associées aux vecteurs $\psi_{n,\vec{k}}$ sont appelées bandes d'énergie du cristal, que l'on peut en général approcher avec une loi parabolique pour un vecteur d'onde au voisinage de $\vec{k} = 0$:

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,\vec{0}} + \frac{\hbar^2\vec{k}^2}{2m^*_{e,n}} \tag{1.1.4}$$

où $m^*_{e,n}$ est la masse effective de l'électron dans la bande n.

1.1.2 Effets du confinement

A priori, pour une bande donnée, d'après (1.1.4), la relation de dispersion dans le matériau massif s'écrit :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*_e}(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \tag{1.1.5}$$

Cette relation de dispersion donne une densité d'états $\rho(E) \propto \sqrt{E}$ comme on peut le voir sur la figure 1.1.

On peut toutefois confiner l'électron suivant les directions x, y et z :

Puits quantique (2D) : si l'on confine l'électron suivant z, par exemple, le vecteur d'onde de l'électron est quantifié dans la direction z et prend des valeurs discrètes tandis que le mouvement reste libre dans le plan xy. La relation de dispersion s'écrit alors :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m^*_e}(k_x^2 + k_y^2) + E_{z,n} \tag{1.1.6}$$

où $n \in \mathbb{N}$ et les $E_{z,n}$ correspondent aux niveaux d'énergie discrets dus au confinement suivant z, qui sont définis par la taille du piège. Pour un $E_{z,n}$ donné, la densité d'états 2D est constante et définie pour $E > E_{z,n}$. La densité d'états finale est donc une fonction en marches d'escalier, où chaque marche correspond au passage de l'énergie $E_{z,n}$ d'un état confiné.

Fil quantique (1D) : si le confinement a lieu suivant z et y, le mouvement ne reste libre que dans la direction x. La relation de dispersion s'écrit :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_e^*}k_x^2 + E_{y,m} + E_{z,n} \tag{1.1.7}$$

où $m, n \in \mathbb{N}$. Dans un fil quantique, pour chaque combinaison $E_{m,n} = E_{y,m} + E_{z,n}$, la densité d'états sera de la forme $\rho(E) \propto 1/\sqrt{E - E_{m,n}}$. Pour chaque $E_{m,n}$ on obtient donc des pics similaires à ce qui est tracé sur la figure 1.1.

Boîte quantique (0D) : Enfin si l'on confine l'électron suivant toutes les directions, on obtient :

$$E = E_{x,l} + E_{y,m} + E_{z,n} \tag{1.1.8}$$

c'est-à-dire que l'énergie de l'électron est totalement quantifiée et les niveaux d'énergie sont définis par la taille du piège. La densité d'états n'est alors non nulle que lorsque l'énergie vaut $E_{x,l} + E_{y,m} + E_{z,n}$.

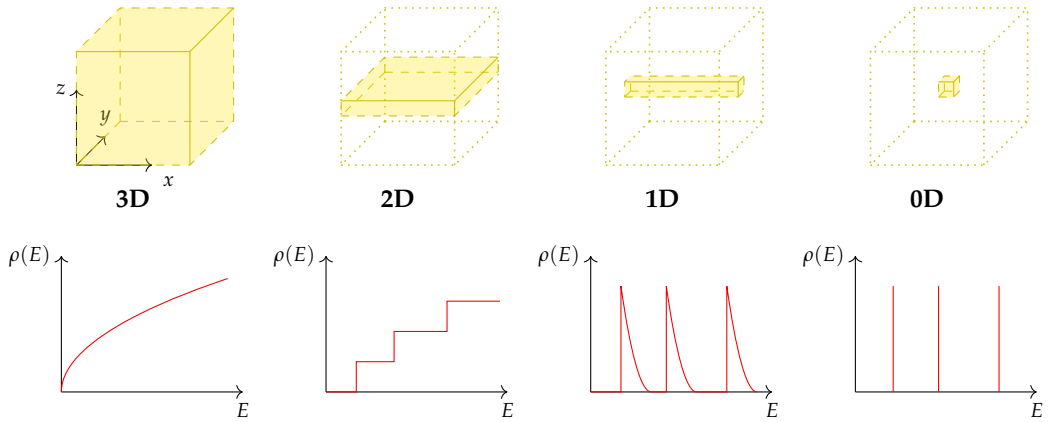


FIGURE 1.1 — Différents types de confinement et densités d'états associées.

1.2 Fabrication et principales caractéristiques des boîtes

1.2.1 Fabrication

Afin de confiner les porteurs de charge dans différentes directions, comme dans le paragraphe 1.1.2, l'idée est de fabriquer des hétérostructures dont une au moins des

dimensions caractéristiques sera plus petite que la longueur d'onde de De Broglie de l'électron. À basse température ($T < 50$ K) dans des semiconducteurs comme le GaAs, celle-ci est supérieure à 100 nm. Pour des structures dont les dimensions sont de l'ordre de 10 nm, on observera donc des effets quantiques liés au confinement.

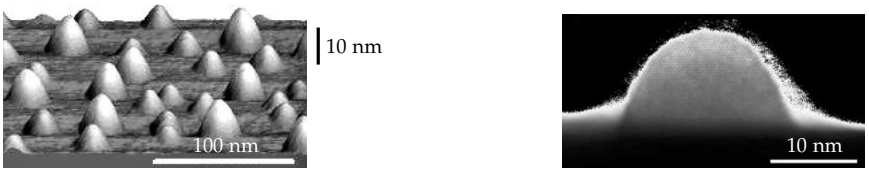
Les boîtes quantiques confinent les électrons dans les trois directions de l'espace. Pour cela, on fabrique des structures dont les trois dimensions sont de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Deux grandes familles de techniques existent : la synthèse chimique qui consiste à fabriquer les nanocristaux en solution sous la forme de colloïdes, et l'épitaxie où les nanocristaux sont fabriqués sur un substrat par dépôt de couches atomiques successives.

La synthèse chimique de colloïdes date des années 1980, et a commencé par la synthèse de microcristaux dans une matrice vitreuse [Ekimov *et al.* 1985] puis directement en solution liquide [Murray *et al.* 1993] sous la forme de nanocristaux colloïdaux. Parmi les avantages de la synthèse chimique, on peut citer leur fabrication simple en grande quantité [Z. A. Peng & X. Peng 2001 ; Tessier *et al.* 2015] ainsi que leur utilisation préférentielle pour de multiples applications, que ce soit comme traceurs en biologie [Åkerman *et al.* 2002 ; Bruchez *et al.* 1998 ; Dubertret *et al.* 2002], comme milieu à gain pour des lasers [Eisler *et al.* 2002 ; Klimov *et al.* 1999], pour fabriquer des diodes électroluminescentes [Coe *et al.* 2002] ou des cellules photovoltaïques [Gur *et al.* 2005]. Cela leur confère un potentiel et un intérêt industriel très important. Le matériau le plus courant pour les nanocristaux colloïdaux est le CdSe et d'autres semiconducteurs II-VI, mais des semiconducteurs III-V comme l'InP sont promis à un bel avenir du fait de leur toxicité plus faible [Tessier *et al.* 2015].

L'autre voie est la fabrication par épitaxie, qui consiste à déposer les couches atomiques une par une pour former un cristal. En jouant sur les paramètres de maille entre les différents matériaux, il est possible d'induire des contraintes conduisant à la formation d'îlots, ce qui correspond au mode de croissance Stranski–Krastanov (SK) [Stranski & Krastanov 1938]. Le couple de matériaux historiquement utilisé pour la fabrication de boîtes quantiques suivant la méthode SK est l'InAs/GaAs, employé depuis les années 1980 [Goldstein *et al.* 1985]. En effet, l'InAs a un paramètre de maille 7% supérieur au GaAs. En déposant de l'InAs sur un substrat de GaAs, comme représenté sur la figure 1.2, l'InAs va relaxer en îlots lorsque l'épaisseur moyenne de la couche d'InAs dépasse typiquement 1,7 monocouches [Gérard, Génin *et al.* 1995]. On forme ainsi des structures telles que celles présentées sur la figure 1.3, avec une taille typique de l'ordre de 10 nm. Ces îlots sont ensuite recouverts de GaAs. Remarquez que cette méthode de croissance laisse un puits quantique en InAs appelé *couche de mouillage*.

L'épitaxie produit donc des échantillons macroscopiques solides, pouvant être gravés, contactés et manipulés plus aisément que des colloïdes. Cela offre l'avantage de pouvoir intégrer plus facilement les boîtes quantiques dans des structures photoniques, permettant d'étudier des effets d'électrodynamique quantique en cavité

FIGURE 1.2 — Étapes de fabrication de boîtes quantiques InAs/GaAs par la méthode SK.



(a) Îlots d'InAs sur un substrat de GaAs observés au microscope à force atomique (AFM) (source : *Nanostructure Materials & Devices Laboratory of University of Southern California*).

(b) Boîte quantique d'InAs sur du GaAs observée au microscope électronique en transmission (TEM) (source : *Institute for Microstructural Sciences*, NRC, Canada).

FIGURE 1.3 — Images de boîtes quantiques en InAs formées par épitaxie suivant la méthode SK sur du GaAs.

(*cavity quantum electrodynamics*, CQED) [LODAHL *et al.* 2004 ; REITHMAIER *et al.* 2004] ou des circuits logiques [BENTHAM *et al.* 2015 ; ZRENNER *et al.* 2002]. Les matériaux usuels pour l'épitaxie des boîtes quantiques sont les semiconducteurs III-V comme l'AlAs, l'InAs, le GaAs, qui offrent de nombreux avantages, notamment le fait que l'InAs/GaAs ont une différence de gap importante ($\Delta E_g = 1{,}1$ eV) et les bons paramètres de maille pour la croissance par la méthode SK. Cela n'exclue pas l'utilisation de semiconducteurs IV comme le silicium et le germanium [EAGLESHAM & CERULLO 1990, à voir aussi pour les trois modes de croissance en hétéroépitaxie] et les II-VI comme le CdSe [XIN *et al.* 1996].

Depuis les années 1990, les boîtes quantiques peuvent aussi être fabriquées par épitaxie dite « de gouttelettes » *(droplet epitaxy)*, qui produit des boîtes sans contraintes et sans couche de mouillage [KOGUCHI *et al.* 1991 ; WATANABE *et al.* 2000]. Elle permet également de fabriquer d'autres formes comme des anneaux ou des pyramides, suivant des axes cristallographiques non permis par la méthode SK [JO *et al.* 2012 ; SOMASCHINI *et al.* 2009].

Enfin, plusieurs technologies permettent de produire des boîtes quantiques épitaxiées : l'épitaxie par jets moléculaires (*Molecular Beam Epitaxy*, MBE) ou l'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (*Metalorganic Chemical Vapor Deposition*, MOCVD). Si la MOCVD permet une plus grande reproductibilité et une plus grande vitesse de croissance, la MBE permet en général de mieux maîtriser les conditions de croissance, ne serait-ce que parce qu'elle permet le suivi *in situ* de la croissance. La MBE est privilégiée pour nos échantillons.

1.2.2 Structure des niveaux d'énergie

Une boîte quantique n'est en réalité pas un puits infini de potentiel pour les porteurs de charge, comme dans le paragraphe 1.1.2. En pratique, on utilise une hétérostructure où un matériau de faible gap comme l'InAs (0,36 eV à 300 K) forme des nanocristaux à l'intérieur d'un matériau à plus grand gap comme le GaAs (1,42 eV à 300 K). Cela conduit à un diagramme d'énergie suivant la direction de croissance tel que celui représenté sur la figure 1.4. Les bords de bande associés aux matériaux massifs sont représentés en trait orange, sous la forme de pointillés dans le cas de l'InAs. Au niveau de la boîte quantique, on retrouve les états discrets, notés S_e, P_e dans la bande de conduction et S_h, P_h dans la bande de valence, qui sont dus au confinement de type 0D. Notez qu'en fonction de la profondeur du piège, qui dépend de la taille de la boîte quantique et des matériaux utilisés, les niveaux P ne sont pas nécessairement présents. Les aplats de couleur indiquent un continuum d'états. À plus haute énergie on retrouve ainsi la couche de mouillage en InAs qui correspond à un continuum 2D, puis le GaAs massif qui constitue un continuum 3D.

Ce diagramme d'énergie montre que les paires électron-trou restent piégées dans les niveaux discrets de la boîte quantique, avant de se recombiner radiativement par la transition $S_e - S_h$.

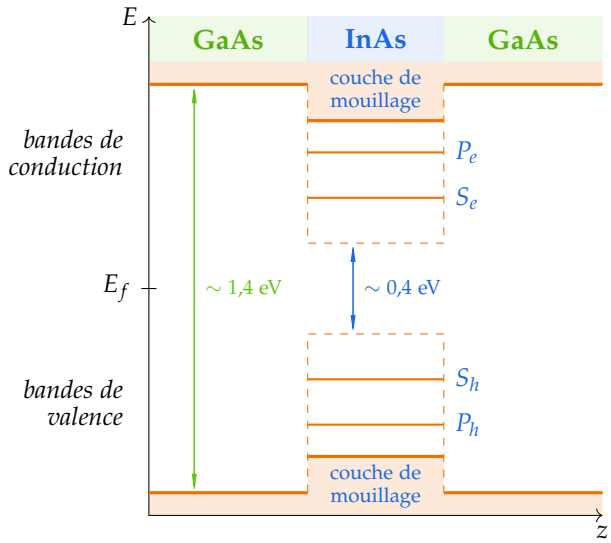


FIGURE 1.4 — Allure des niveaux d'énergie en fonction de la direction de croissance z pour une boîte quantique InAs/GaAs épitaxiée avec une couche de mouillage. E_f est l'énergie de Fermi.

La figure 1.5 donne l'allure de la densité d'états électroniques dans une boîte quantique. Des continuums sont associés au GaAs, qui a la densité d'états d'un matériau massif, et à la couche de mouillage en InAs, qui est un puits quantique possédant une densité d'états constante ou en escalier (cf. figure 1.1). Pour des écarts

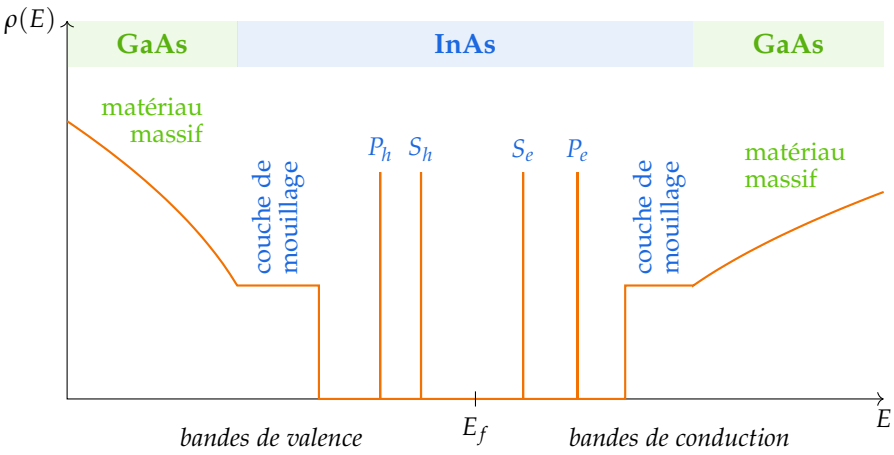


FIGURE 1.5 — Allure de la densité d'états électronique dans une boîte quantique épitaxiée InAs/GaAs avec une couche de mouillage. E_f est l'énergie de Fermi.

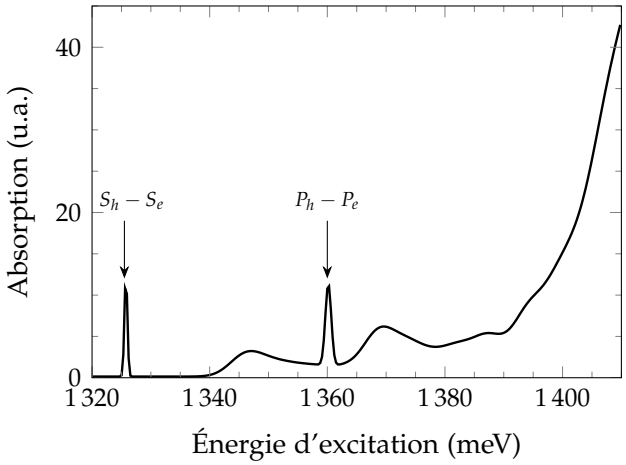


FIGURE 1.6 — Spectre d'absorption théorique d'une boîte quantique (reproduite de [VASANELLI 2002, figure 7.4, p. 110]).

d'énergie plus faibles, on retrouve les états discrets de la boîte quantique.

La densité d'états de la figure 1.5 est à relier au spectre d'absorption présenté sur la figure 1.6, qui est reproduit à partir de [VASANELLI 2002]. Il s'agit d'une courbe théorique décrivant le comportement typique de l'absorption par une boîte quantique InAs/GaAs en fonction de l'énergie d'excitation. Se principales caractéristiques se retrouvent sur des mesures comme celles de [KAMMERER 2002 ; TODA *et al.* 1999]. Un premier pic d'absorption (ici à 1326 meV, c'est-à-dire 935 nm) correspond à la transition $S_h - S_e$, et un second à 1360 meV à $P_h - P_e$. D'autres pics plus larges, notamment à 1345 meV ou à 1370 meV, correspondent à des transitions croisées entre les niveaux S et P de la boîte et le continuum de la couche de mouillage. Ces transitions croisées constituent également le début du continuum visible à haute

énergie. Enfin, à très haute énergie, au-delà de 1400 meV, des transitions dans la couche de mouillage apparaissent, puis dans le GaAs massif — dont la bande interdite est large d'environ 1,5 eV à 10 K.

Ces échelles d'énergie sont assez typiques pour les boîtes InAs/GaAs. Avec nos échantillons, l'énergie de la transition $S_h - S_e$ pourra varier de 1265 à 1330 meV (c'est-à-dire entre 930 et 980 nm).

1.2.3 Excitons dans les boîtes

Lorsqu'un photon est absorbé dans un matériau semi-conducteur, une paire électron–trou se forme. Du fait de leur charge opposée, ces deux particules s'attirent par interaction coulombienne et peuvent former un complexe hydrogénoïde appelé *exciton*. Dans les semi-conducteurs III-V massifs, l'énergie de liaison d'un exciton est typiquement de 10 meV, ce qui impose la plupart du temps des températures cryogéniques pour les observer (à 300 K, $k_B T = 26$ meV). Dans le GaAs par exemple, l'énergie de liaison est de 4,7 meV.

L'exciton dans les semiconducteurs est fortement délocalisé ; on peut calculer le rayon de Bohr de l'exciton dans un matériau massif qui vaut :

$$a_{X,3D} = a_0 \varepsilon_r \frac{m_e}{m} \tag{1.2.1}$$

où $a_0 = 0{,}529$ Å est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène, ε_r est la constante diélectrique du matériau, m_e est la masse de l'électron et m est la masse de la particule réduite : $\frac{1}{m} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$.

Le rayon de Bohr de l'exciton dans le GaAs vaut environ 115 Å et 240 Å dans l'InAs. Si l'on modélise la boîte par une sphère de rayon a_{BQ}, on peut distinguer deux régimes de confinement [Ekimov *et al.* 1985] :

- un régime de confinement faible, pour lequel $a_{X,3D} \ll a_{BQ}$, pour lequel l'énergie de liaison due à l'interaction coulombienne prédomine sur l'énergie de confinement due au piège que constitue la boîte quantique,
- un régime de confinement fort, où $a_{BQ} \ll a_{X,3D}$ et l'énergie de confinement prédomine sur l'interaction coulombienne.

C'est dans ce dernier cas que les boîtes quantiques se situent en général, puisque les dimensions typiques des boîtes quantiques auto-organisées en InAs se situent entre 1 et 10 nm, soit tout au plus comparables au rayon de Bohr de l'exciton. Dans le cas des excitons dans les boîtes quantiques, l'essentiel de l'énergie de liaison n'est donc en général pas dû à l'interaction coulombienne mais au confinement dans la structure. C'est pourquoi, dans ce cas, on parle parfois de quasi-exciton, pour lequel les charges peuvent être considérées indépendantes et un décalage en énergie dû à l'interaction coulombienne est ajouté comme une correction de l'ordre de 20 meV alors que l'énergie d'ionisation de l'électron ou du trou sont de l'ordre de 100 meV [Vasanelli 2002].

1.3 Mécanismes de relaxation, modèle du système à deux niveaux

1.3.1 Mécanismes de relaxation

Considérons une boîte quantique unique en InAs, en présence d'une couche de mouillage, insérée dans du GaAs massif. Pour créer un ou des excitons dans la boîte quantique, de nombreuses charges sont en général créées dans l'environnement proche, une ou plusieurs paires électron–trou étant finalement piégées dans la boîte. Ce processus implique l'existence de mécanismes de relaxation permettant à la paire électron–trou de perdre de l'énergie [Ferreira & Bastard s.d.]. De plus, l'énergie de la transition fondamentale est affectée par l'ensemble de ces mécanismes qui perturbent l'environnement électrostatique et mécanique de la boîte, menant à une dégradation de la cohérence de la transition $S_e - S_h$.

Relaxation de la population vers $S_e - S_h$

La méthode la plus courante pour injecter des charges dans une boîte quantique est d'exciter à haute énergie, en créant des paires électron–trou dans la couche de mouillage ou dans la barrière (c'est-à-dire dans le GaAs massif). L'excitation peut se faire optiquement ou électriquement, par injection directe de charges dans l'échantillon. On parle alors d'excitation non-résonnante.

Lorsque l'on excite le système de manière non-résonnante, on crée de nombreuses paires électron–trou dans le continuum d'états du matériau massif ou de la couche de mouillage. Des mécanismes permettent ensuite aux paires électron–trou de perdre de l'énergie :

- l'effet Auger, pour lequel une paire électron–trou va transférer son énergie et son impulsion à une autre paire,
- l'assistance par l'émission d'un ou de plusieurs phonons, permettant également de diminuer l'énergie et l'impulsion d'une paire électron–trou.

Ces deux processus permettent la capture dans la boîte quantique de quelques unes des paires électron–trou créées dans le continuum du matériau massif et de la couche de mouillage [Magnusdottir, Bischoff *et al.* 2003 ; Magnusdottir, Uskov *et al.* 2002 ; Uskov *et al.* 1998] ; leur efficacité relative dépend de la puissance d'excitation et de la géométrie des boîtes.

Une fois capturé dans la boîte, la relaxation de l'énergie de l'exciton entre les niveaux discrets est moins évidente à expliquer car l'effet Auger est un processus à plusieurs charges qui n'est pas efficace si les niveaux ne contiennent qu'un seul exciton. Lorsqu'il y a plusieurs charges, il est toutefois très efficace avec des temps de relaxation < 1 ps typiquement pour un électron [Ferreira & Bastard 1999a ; Ferreira & Bastard 1999b]. Pour la relaxation assistée par les phonons, seul le mode

longitudinal de phonons optiques (phonons LO) est susceptible d'être efficace, mais leur énergie est bien définie (typiquement 36 meV dans le GaAs). Pour qu'ils ouvrent une voie de relaxation, il faut donc un accord entre l'énergie des phonons LO et les écarts d'énergie entre les niveaux discrets de la boîte quantique, ce qui est très peu probable [Benisty *et al.* 1991 ; Bockelmann & Bastard 1990]. La relaxation assistée par les phonons est donc a priori très inefficace. Toutefois, il existe un couplage fort phonon–électron [Hameau *et al.* 1999] et phonon–trou dans les boîtes quantiques, ce qui donne lieu à l'apparition de modes phonon–excitons appelés *polarons excitoniques* qui ouvrent une voie de relaxation entre les états discrets. Par exemple, un électron dans l'état P_e sera couplé avec un phonon LO, celui-ci pouvant se désintégrer en deux phonons moins énergétiques [Verzelen *et al.* 2002, 2000] en laissant l'électron dans l'état S_e ; le processus symétrique existe pour les trous. Comme la désintégration des phonons LO est très efficace, cette voie de relaxation l'est également, avec un temps typique < 10 ps entre $P_e - P_h$ et $S_e - S_h$.

Une manière plus délicate d'injecter des charges dans les boîtes est de les exciter optiquement en utilisant des photons qui ont exactement l'énergie qui sépare, par exemple, S_e et S_h ou bien P_e et P_h, les transitions entre ces niveaux étant couplées à la lumière. On parle alors d'excitation résonnante. Les excitons sont créés directement dans la boîte quantique, qui est essentiellement la seule structure qui absorbe à ces énergies.

Relaxation de la population et de la cohérence pour la transition $S_e - S_h$

Dans cette thèse, nous allons nous intéresser aux propriétés de cohérence des photons émis par la boîte quantique, et en particulier par la transition $S_e - S_h$.

Si la relaxation via les polarons évoquée au paragraphe précédent est susceptible de provoquer des recombinaisons non-radiatives, l'essentiel du couplage aux phonons disparaît aux températures cryogéniques auxquelles nous travaillons ($T < 20$ K), que ce soit pour la relaxation de la population ou la relaxation de la cohérence [Borri *et al.* 2001 ; Favero *et al.* 2003 ; Verzelen *et al.* 2002].

La seconde voie de relaxation est le couplage au champ électromagnétique qui permet la recombinaison radiative de l'exciton par émission spontanée, caractérisée par un temps de vie T_1. Cette relaxation de l'énergie induit nécessairement une relaxation de la cohérence. Lorsque la relaxation de la cohérence n'est induite que par la voie radiative, le système est dit à la limite radiative, ce qui permet d'obtenir les meilleures propriétés de cohérence des photons émis par cette transition.

La dernière voie de relaxation n'affecte que la cohérence. Elle est liée à l'interaction avec l'environnement électrostatique fluctuant. Les impuretés dans l'échantillon et les défauts, en particulier aux interfaces entre l'InAs et le GaAs, constituent des pièges

qui peuvent accueillir des charges. Le piégeage et le dépiégeage des charges* vont influencer les niveaux d'énergie de la boîte quantique par effet Stark. En fonction de la dynamique de piégeage, de la nature du piège, de sa distance à la boîte quantique, les fluctuations résultantes peuvent être très variables en amplitude et en fréquence. On distingue en particulier deux régimes en considérant les fluctuations d'énergie des niveaux de la boîte quantique [Berthelot *et al.* 2006 ; Berthelot 2008] :

- des fluctuations lentes et de grande amplitude, telles que $\Delta E\,\tau_c \gg \hbar$ (où ΔE est l'amplitude des fluctuations et τ_c le temps caractéristique), où la raie va se déplacer en fonction de l'énergie des niveaux influencée par les fluctuations de l'environnement électrostatique, résultant en une raie gaussienne ;
- des fluctuations rapides et de faible amplitude, telles que $\Delta E\,\tau_c \ll \hbar$, où les variations d'énergie instantanée sont vues comme un mouvement brownien sur la phase de la cohérence de la transition $S_e - S_h$, résultant en une raie lorentzienne élargie.

Ce dernier cas aboutit à une relaxation de la cohérence en exponentielle décroissante, caractérisée par un temps T_2^* généralement appelé *temps de déphasage pur*.

Dans notre cas, nous allons négliger tous les processus hormis la recombinaison radiative et le régime de fluctuations rapides de l'environnement. L'enjeu pour se rapprocher de la limite radiative sera donc de disposer d'un système où T_2^* est le plus long possible, en particulier plus long que le temps de vie radiatif T_1.

1.3.2 Excitation résonnante et modèle du système à deux niveaux

On peut déduire des considérations du paragraphe précédent que les processus dégradant la cohérence de la transition $S_e - S_h$ peuvent en grande partie être supprimés en excitant directement à l'énergie de la transition, de manière résonnante. Cela évite l'absorption par le continuum d'états de la barrière ou de la couche de mouillage, qui créent de multiples charges, sources de perturbations électrostatiques et donc de diffusion spectrale. Cette idée est appuyée par les mesures de [Kammerer 2002] (cf. figure 1.7), où la raie de photoluminescence est d'autant plus fine que l'énergie d'excitation est proche de l'énergie de l'exciton, signe d'une meilleure cohérence.

La recombinaison d'un exciton S est la seule raie bien isolée spectralement sur le spectre d'absorption de la figure 1.6. Lorsqu'un laser est accordé à l'énergie de cet exciton, la formation d'une paire électron–trou n'a lieu que dans la boîte quantique, et le principe de Pauli n'autorise au plus que deux excitons S dans la boîte. À la manière de ce qui est schématisé sur la figure 1.8, lorsqu'on excite la boîte de manière résonnante avec $S_e - S_h$, on peut considérer cette transition comme celle entre deux états de la boîte quantique : un état fondamental noté $|g\rangle$ où la boîte est vide et ne

* Ces processus de piégeage et de dépiégeage sont souvent, eux, liés aux phonons, même à basse température.

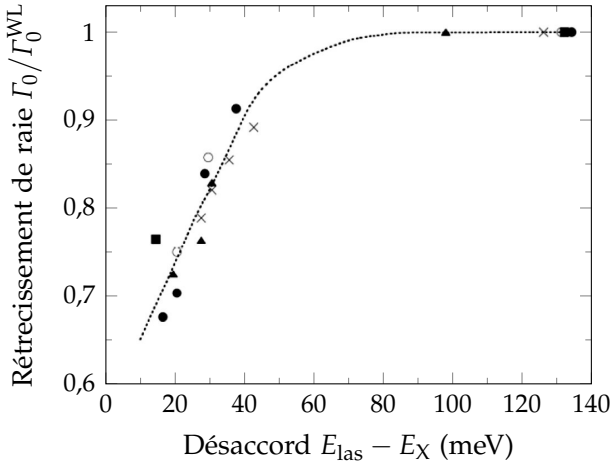


FIGURE 1.7 — Rétrécissement de la raie de photoluminescence de la transition $S_e - S_h$ en fonction de l'énergie d'excitation (reproduite de [KAMMERER 2002, figure 5.4.4, p. 133]). Γ_0 et Γ_0^{WL} sont respectivement les largeurs à mi-hauteur de la raie à l'énergie d'excitation et à l'énergie de luminescence de la couche de mouillage (limite à droite). E_{las} et E_{X} sont respectivement les énergies du laser d'excitation et de l'exciton S. Les différents marqueurs correspondent à différentes boîtes quantiques.

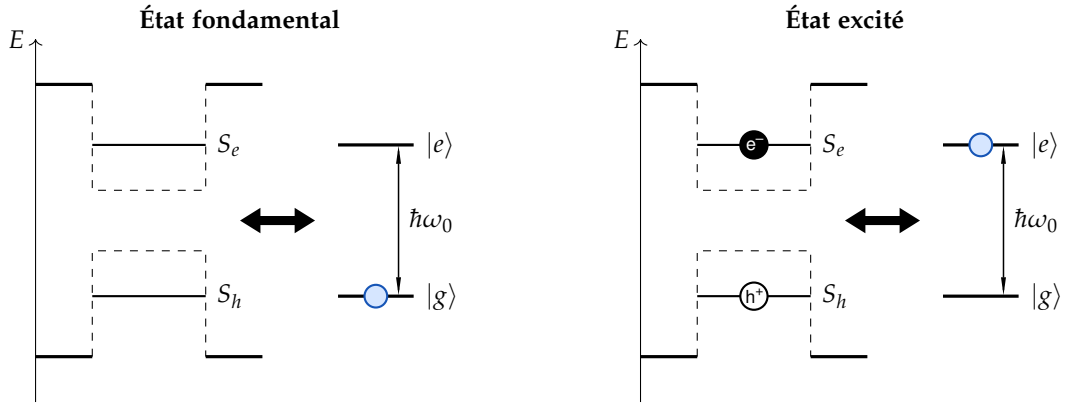


FIGURE 1.8 — Modèle du système à deux niveaux.

contient pas d'exciton, et un état excité noté $|e\rangle$ où la boîte contient un exciton, avec un électron sur le niveau S_e et un trou sur le niveau S_h.

Comme nous le verrons au chapitre 2, l'excitation résonnante n'est pas facile à réaliser expérimentalement. Notre montage permet toutefois de la réaliser et nous nous placerons dans ce cadre où les propriétés de cohérence sont meilleures et où l'on peut utiliser la physique abondamment documentée du système à deux niveaux.

1.4 Excitation résonnante : une approche théorique

Nous allons à présent aborder l'excitation résonnante de manière théorique, grâce à une approche semi-classique, dans laquelle un champ classique interagit avec un système à deux niveaux. Nous nous intéresserons à l'évolution de l'amplitude et de la cohérence du champ émis par une boîte quantique unique sous excitation résonnante en fonction de la puissance d'excitation.

1.4.1 Modèle semi-classique

Le système étudié dans cette section est le système à deux niveaux constitué par la boîte quantique couplé au champ électromagnétique. Le raisonnement présenté ci-dessous suit globalement le formalisme et la méthode présentés dans [Boyd 2008, cf. chapitre 6, p. 277]. Notez cependant que le tilde ~ est utilisé ici pour désigner les grandeurs dans le référentiel tournant du laser d'excitation. Pour éviter le conflit de notations avec le livre de Boyd, nous noterons le champ oscillant simplement $E(t)$ et l'amplitude du champ $\mathcal{E}$.

Nous utiliserons le formalisme de la matrice densité, dans lequel l'état du système est décrit par sa matrice densité ρ :

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{bmatrix} \tag{1.4.1}$$

où $\rho_{eg} = \rho_{ge}^*$ sont appelées cohérences. ρ_{gg} et ρ_{ee} sont les populations des niveaux $|g\rangle$ et $|e\rangle$. On a $\rho_{gg} + \rho_{ee} = 1$. Notez que la matrice densité et ses coefficients dépendent du temps, mais que nous n'écrirons en général pas cette dépendance temporelle pour alléger les notations.

On rappelle également que l'on peut écrire ρ sous la forme :

$$\rho = \rho_{ee}|e\rangle\langle e| + \rho_{eg}|e\rangle\langle g| + \rho_{ge}|g\rangle\langle e| + \rho_{gg}|g\rangle\langle g| \tag{1.4.2}$$

Dans un premier temps, nous ne considérons pas de phénomènes de relaxation, qui seront introduits phénoménologiquement à la fin de ce paragraphe. Nous définissons l'hamiltonien H décrivant l'évolution du champ électromagnétique couplé au dipôle induit par le laser d'excitation :

$$H = H_0 + V(t) \tag{1.4.3}$$

où H_0 est le hamiltonien du système à deux niveaux et $V(t)$ est le hamiltonien d'interaction entre le système et le champ électromagnétique.

Pour le système à deux niveaux, on appelle $|g\rangle$ et $|e\rangle$ les deux états, d'énergies $\hbar\omega_g$ et $\hbar\omega_e$. On pose $\omega_0 = \omega_e - \omega_g$. L'état $|e\rangle$, que nous appellerons état excité, se situe

donc $\hbar\omega_0$ au-dessus de $|g\rangle$, que nous appellerons état fondamental. L'hamiltonien H_0 s'écrit :

$$H_0 = \begin{bmatrix} \hbar\omega_e & 0 \\ 0 & \hbar\omega_g \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{1.4.4}$$

Pour le terme d'interaction, nous travaillons dans l'approximation dipolaire :

$$V(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}_{\mathrm{L}}(t) \tag{1.4.5}$$

où $\vec{\mu}$ est l'opérateur dipolaire et $\vec{E}_{\mathrm{L}}(t)$ le champ électrique du laser d'excitation qui agit comme un terme de forçage oscillant à ω_{L}.

Les termes diagonaux de V sont nuls pour des raisons de parité, ainsi on pose μ_{eg} tel que :

$$V(t) = \begin{bmatrix} 0 & -\vec{\mu}_{eg} \cdot \vec{E}_{\mathrm{L}}(t) \\ -\vec{\mu}^*_{eg} \cdot \vec{E}^*_{\mathrm{L}}(t) & 0 \end{bmatrix} \tag{1.4.6}$$

Les termes non-diagonaux de $V(t)$ seront notés $V_{eg}(t)$ et $V_{ge}(t)$.

L'équation du mouvement de la matrice densité ρ s'écrit :

$$\frac{\mathrm{d}\rho}{\mathrm{d}t} = \frac{-\mathrm{i}}{\hbar}\,[H, \rho] \tag{1.4.7}$$

Les équations d'évolution des coefficients de la matrice densité ρ peuvent alors s'écrire :

$$\frac{\mathrm{d}\rho_{eg}}{\mathrm{d}t} = -\mathrm{i}\omega_0\rho_{eg} + \frac{\mathrm{i}}{\hbar}V_{eg}(t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) \tag{1.4.8a}$$

$$\frac{\mathrm{d}\rho_{ee}}{\mathrm{d}t} = \frac{\mathrm{i}}{\hbar}\left(V_{eg}(t)\rho_{ge} - \rho_{eg}V_{ge}(t)\right) \tag{1.4.8b}$$

$$\frac{\mathrm{d}\rho_{gg}}{\mathrm{d}t} = \frac{\mathrm{i}}{\hbar}\left(V_{ge}(t)\rho_{eg} - \rho_{ge}V_{eg}(t)\right) \tag{1.4.8c}$$

Il est possible de prendre en compte les processus de relaxation en ajoutant des temps de relaxation T_1 et T_2 de manière phénoménologique et de ramener les équations (1.4.8b) et (1.4.8c) à une équation unique sur l'inversion de population $(\rho_{ee} - \rho_{gg})$ (sachant que $\rho_{gg} + \rho_{ee} = 1$) :

$$\frac{\mathrm{d}\rho_{eg}}{\mathrm{d}t} = -\left[\mathrm{i}\omega_0 + \frac{1}{T_2}\right]\rho_{eg} + \frac{\mathrm{i}}{\hbar}V_{eg}(t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) \tag{1.4.9a}$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}(\rho_{ee} - \rho_{gg}) = -\frac{(\rho_{ee} - \rho_{gg}) + 1}{T_1} - \frac{2\mathrm{i}}{\hbar}\left(V_{eg}(t)\rho_{ge} - \rho_{eg}V_{ge}(t)\right) \tag{1.4.9b}$$

1.4.2 Signification de T_1 et T_2 – limite radiative

En considérant l'équation (1.4.9b) sans champ excitateur ($V_{eg} = 0$), l'inversion de population a la dépendance temporelle suivante :

$$\left(\rho_{ee}(t) - \rho_{gg}(t)\right) = \left[\left(\rho_{ee}(0) - \rho_{gg}(0)\right) + 1\right]\,\mathrm{e}^{-t/T_1} - 1 \tag{1.4.10}$$

L'inversion de population tend alors naturellement vers -1, ce qui signifie qu'aux temps longs, la population est entièrement dans l'état fondamental $|g\rangle$. Cette évolution a lieu avec un temps caractéristique T_1, appelé *temps de relaxation de la population* ou plus couramment *temps de vie* de l'état excité.

De la même manière avec l'équation (1.4.9a) et $V_{eg} = 0$ on obtient :

$$\rho_{eg}(t) = \rho_{eg}(0)\,\mathrm{e}^{-(\mathrm{i}\omega_0 + \frac{1}{T_2})t} \tag{1.4.11}$$

Or la valeur moyenne du moment dipolaire μ induit par la transition $|e\rangle - |g\rangle$ s'écrit :

$$\begin{aligned}\langle\mu\rangle &= \mathrm{Tr}\,[\mu\rho] \\ &= \mu_{ge}\rho_{eg}(t) + \mu_{eg}\rho_{ge}(t) \\ &= \left[\mu_{ge}\rho_{eg}(0)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_0 t} + \text{c.c.}\right]\,\mathrm{e}^{-t/T_2}\end{aligned} \tag{1.4.12}$$

Ainsi le moment dipolaire oscille naturellement à ω_0 et décroît vers 0 avec un temps caractéristique T_2 appelé *temps de relaxation de la cohérence*, ou plus couramment *temps de cohérence* — bien que ce nom prête à confusion : le temps de cohérence des photons émis peut être très différent de T_2.

T_1 et T_2 sont liés par la relation suivante* :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2\,T_1} + \frac{1}{T_2^*} \tag{1.4.13}$$

où T_2^* est appelé *temps de déphasage pur*, et décrit le temps caractéristique de l'ensemble des processus causant une perte de cohérence sans perte de population.

Lorsque T_2^* devient très grand devant T_1, on peut négliger l'influence du déphasage pur. Cette limite est appelée *limite radiative* puisque dans ce cas seul le couplage radiatif limite la cohérence du système. On a alors :

$$T_2 = 2\,T_1 \tag{1.4.14}$$

et l'on peut caractériser T_1 et T_2 en utilisant le taux d'émission spontanée Γ :

$$\Gamma = \frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} \tag{1.4.15}$$

* [Boyd 2008, p. 283, éq. (6.2.21a)] La raison pour laquelle une telle dépendance entre T_2 et T_1 existe est bien expliquée aux p. 156–157. La décroissance de la population implique également la décroissance de la cohérence, c'est-à-dire de l'amplitude du moment dipolaire. De plus, le facteur 2 est lié à la nature des coefficients de la matrice densité, la cohérence étant proportionnelle au champ électrique et la population à l'intensité.

1.4.3 Référentiel tournant du laser et solutions en régime stationnaire

Dans l'hypothèse d'une excitation par un laser continu monochromatique de pulsation ω_{L}, le champ d'excitation s'écrit :

$$E_{\mathrm{L}}(t) = \mathcal{E}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} + \mathcal{E}^*\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} \tag{1.4.16}$$

Les coefficients de l'hamiltonien d'interaction $V(t)$ donné par (1.4.6) prennent la forme :

$$V_{eg}(t) = -\mu_{eg}\left(\mathcal{E}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} + \mathcal{E}^*\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t}\right) \tag{1.4.17}$$

Or l'équation (1.4.11) montre que ρ_{eg} évolue naturellement en $\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_0 t}$. D'après l'équation (1.4.9a), dans l'hypothèse d'un pompage à une énergie proche de la résonance, la composante du champ du laser tournant en $\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t}$ sera donc bien plus efficace que la composante en $\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t}$. L'approximation séculaire consiste à négliger cette dernière composante, ainsi on obtient :

$$\begin{aligned} V_{eg}(t) &= -\mu_{eg}\mathcal{E}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} \\ V_{ge}(t) &= -\mu_{eg}^*\mathcal{E}^*\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} \end{aligned} \tag{1.4.18}$$

De plus, afin de supprimer la dépendance temporelle des coefficients dans les équations d'évolution (1.4.9a) et (1.4.9b), on définit la matrice densité $\tilde{\rho}$ dans le référentiel tournant du laser :

$$\tilde{\rho} = \begin{bmatrix} \tilde{\rho}_{gg} & \tilde{\rho}_{ge} \\ \tilde{\rho}_{eg} & \tilde{\rho}_{ee} \end{bmatrix} \tag{1.4.19}$$

dont les coefficients sont tels que :

$$\begin{aligned} \rho_{gg}(t) &= \tilde{\rho}_{gg}(t) \\ \rho_{ee}(t) &= \tilde{\rho}_{ee}(t) \\ \rho_{eg}(t) &= \tilde{\rho}_{eg}(t)\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} \\ \rho_{ge}(t) &= \tilde{\rho}_{ge}(t)\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}t} \end{aligned} \tag{1.4.20}$$

Dans le référentiel tournant du laser, les équations d'évolution (1.4.9a) et (1.4.9b) s'écrivent alors* :

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{\rho}_{eg}}{\mathrm{d}t} = \left[\mathrm{i}\Delta - \frac{1}{T_2}\right]\tilde{\rho}_{eg} - \frac{\mathrm{i}}{\hbar}\mu_{eg}\mathcal{E}(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) \tag{1.4.21a}$$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) = -\frac{1 + (\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})}{T_1} + \frac{2\mathrm{i}}{\hbar}\left(\mu_{eg}\mathcal{E}\tilde{\rho}_{ge} - \mu_{ge}\mathcal{E}^*\tilde{\rho}_{eg}\right) \tag{1.4.21b}$$

* Ces équations sont équivalentes aux équations de Bloch optiques. Pour obtenir les équations de Bloch optiques, il faut utiliser les quadratures du champ u et v telles que $\tilde{\rho}_{eg} = \frac{1}{2}(u - \mathrm{i}v)$, en identifiant les parties réelles et imaginaires de l'équation (1.4.21a), et l'inversion de population $w = \tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}$.

où $\Delta = \omega_{\mathrm{L}} - \omega_0$ est le désaccord entre la pulsation du laser et la pulsation propre du système à deux niveaux.

En régime stationnaire, les dérivées temporelles dans les membres de gauche sont nulles, et on obtient :

$$(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})^{(\mathrm{st})} = \frac{-(1+\Delta^2 T_2^2)}{1+\Delta^2 T_2^2 + \frac{4|\mu_{eg}|^2|\mathcal{E}|^2}{\hbar^2} T_1 T_2} \tag{1.4.22}$$

$$\tilde{\rho}_{eg}^{(\mathrm{st})} = \frac{\mu_{eg}\mathcal{E}}{\hbar} \cdot \frac{(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})^{(\mathrm{st})}}{\mathrm{i} + \Delta \cdot T_2} \tag{1.4.23}$$

1.4.4 Lien entre le champ rayonné et le dipôle émetteur

Nous suivons à présent un raisonnement exposé dans [Cohen-Tannoudji *et al.* 1988, cf. § V–D, p. 363].

Le champ rayonné par le dipôle, pris à l'emplacement $\vec{r}_{\mathrm{D}}$ du détecteur à l'instant t, est proportionnel au moment du dipôle émetteur $\mu(t)$ lorsque l'énergie d'excitation est proche de la résonance. Ce champ s'écrit :

$$E(\vec{r}_{\mathrm{D}}, t) \propto \mu\left(t - \frac{r_{\mathrm{D}}}{c}\right) \tag{1.4.24}$$

Notez que ces opérateurs évoluent en fonction du temps et l'expression précédente est donc écrite en représentation de Heisenberg. Pour simplifier les expressions par la suite, nous resterons systématiquement à la position du détecteur, qui ne sera plus précisée, et n'écrirons plus le décalage temporel avec la position du détecteur $t - r_{\mathrm{D}}/c$.

On peut séparer le champ $E(t)$ en deux composantes $E^{(+)}(t)$ et $E^{(-)}(t)$ respectivement de fréquences positives et négatives :

$$E(t) = E^{(+)}(t) + E^{(-)}(t) \tag{1.4.25}$$

Nous pouvons également séparer l'opérateur dipolaire $\mu(t)$ en deux composantes :

$$\mu(t) = \mu_{eg} S_-(t) + \mu_{eg}^* S_+(t) \tag{1.4.26}$$

où les opérateurs $S_-(t)$ et $S_+(t)$ correspondent respectivement aux opérateurs annihilation $|g\rangle\langle e|$ et création $|e\rangle\langle g|$ en représentation de Schrödinger.

D'après l'équation (1.4.11), $\langle \mu_{eg} S_-(t)\rangle = \mu_{eg}\rho_{eg}(t)$ tourne naturellement en $\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_0 t}$ et $\langle \mu_{eg}^* S_+(t)\rangle = \mu_{eg}^*\rho_{ge}(t)$ tourne en $\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_0 t}$. Ainsi, $S_-(t)$ correspond à la composante du moment dipolaire oscillant avec une fréquence positive tandis que $S_+(t)$ est la composante oscillant avec une fréquence négative. D'après les expressions (1.4.24) et (1.4.25), on peut donc écrire :

$$E^{(\pm)}(t) \propto S_{\mp}(t) \tag{1.4.27}$$

1.4.5 Intensité et largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation

D'après l'expression (1.4.27), l'intensité mesurée par le détecteur s'écrit :

$$\langle I(t)\rangle = \langle E^{(-)}E^{(+)}\rangle \propto \langle S_+S_-\rangle \tag{1.4.28}$$

Or $S_+S_- = |e\rangle\langle e|$, l'intensité moyenne émise par la boîte est donc proportionnelle à la population de l'état excité $|e\rangle$. En régime stationnaire, en utilisant le changement de référentiel défini par les relations (1.4.20), le résultat (1.4.22) et la conservation de la population $\rho_{ee} + \rho_{gg} = 1$, on a donc :

$$\begin{aligned}\langle I\rangle^{(\mathrm{st})} \propto \rho_{ee}^{(\mathrm{st})} = \tilde{\rho}_{ee}^{(\mathrm{st})} &= \frac{(\rho_{ee} - \rho_{gg})^{(\mathrm{st})} + 1}{2} \\ &= \frac{\frac{1}{2}\Omega^2 T_1 T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2 + \Omega^2 T_1 T_2}\end{aligned} \tag{1.4.29}$$

où Ω est la pulsation de Rabi à la résonance :

$$\Omega = \frac{2|\mu_{eg}||\mathcal{E}|}{\hbar} \tag{1.4.30}$$

On remarque que Ω est proportionnel au module du champ du laser, ce qui signifie que Ω^2 est proportionnel à l'intensité d'excitation.

L'expression (1.4.29) ci-dessus donnera donc l'intensité totale émise en fonction des temps T_1 et T_2, du désaccord Δ et de la puissance d'excitation proportionnelle à Ω^2. On peut la réécrire sous la forme :

$$\begin{aligned}\langle I\rangle^{(\mathrm{st})} &\propto \frac{1}{2}\cdot\frac{1}{1 + \frac{1+\Delta^2 T_2^2}{\Omega^2 T_1 T_2}} \\ &= \frac{1}{2}\cdot\frac{s}{1+s}\end{aligned} \tag{1.4.31}$$

où l'on définit le *paramètre de saturation* s :

$$s = \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2} \tag{1.4.32}$$

À un désaccord Δ donné, la puissance d'excitation correspondant à $s = 1$ est caractéristique et appelée *puissance de saturation* notée p_{sat}. Nous verrons que cette puissance d'excitation est très importante pour séparer différents régimes d'excitation du système à deux niveaux. Le paramètre de saturation s est proportionnel à la puissance d'excitation et correspond au rapport $\frac{p}{p_{\mathrm{sat}}}$: lorsque s vaut 1, l'excitation est donc à la puissance de saturation du système à deux niveaux. Étant donné que nous travaillerons en général à $\Delta = 0$, nous utiliserons principalement le paramètre de saturation à désaccord nul $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$.

Sur la figure 1.9, l'intensité émise par le système à deux niveaux est représentée en fonction de $\Delta \cdot T_2$, c'est-à-dire du désaccord, pour différentes valeurs de s_0. Ces courbes théoriques sont donc des spectres décrivant les variations de l'intensité émise en fonction du désaccord du laser d'excitation avec l'énergie de la transition. On remarquera que les puissances choisies augmentent exponentiellement et l'effet de saturation du maximum d'émission est clairement observable, la population du niveau excité tendant vers 1/2.

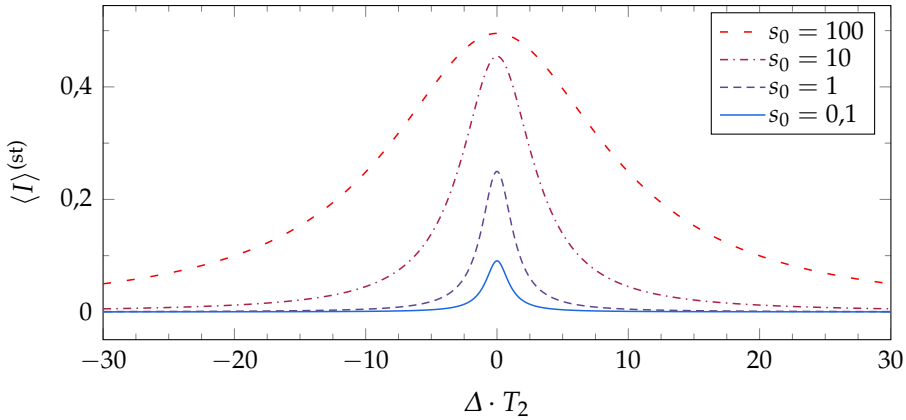
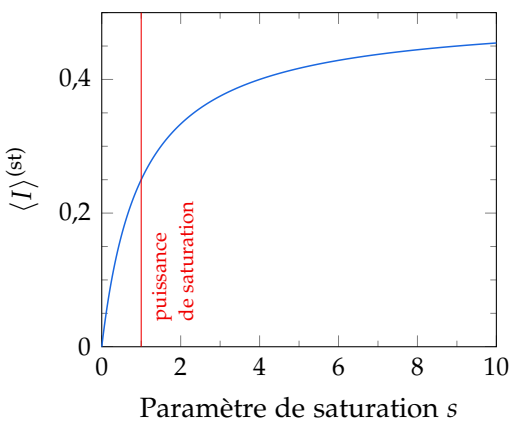
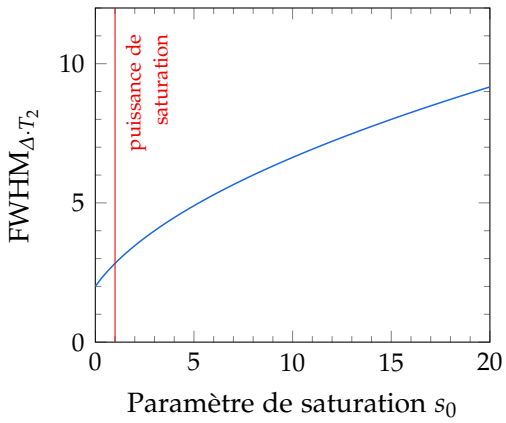


FIGURE 1.9 — Intensité de la photoluminescence du système à deux niveaux en fonction du désaccord $\Delta \cdot T_2$, calculés avec l'expression (1.4.31) pour différentes valeurs du paramètre de saturation s_0.



(a) Courbe de saturation de l'intensité émise par la boîte sous excitation résonnante.



(b) Évolution de la largeur à mi-hauteur du spectre en fonction de la puissance d'excitation.

FIGURE 1.10 — Comportement de l'intensité émise par le système à deux niveaux excité à résonance et largeur à mi-hauteur de son spectre d'excitation.

Cet effet de saturation est clairement visible sur la figure 1.10a, où l'on a tracé l'intensité émise à désaccord nul, en fonction de la puissance d'excitation. La puissance de saturation, pour laquelle $s = 1$ (ou $s_0 = 1$), est représentée par une ligne verticale.

Elle sépare deux régimes de fonctionnement : un régime linéaire pour $s \ll 1$ où la population du niveau excité est proportionnelle à la puissance d'excitation, et un régime saturé pour $s \gg 1$, où la population reste constante à $1/2$, quelle que soit la puissance d'excitation.

La largeur de raie représentée sur la figure 1.10b s'écrit :

$$\mathrm{FWHM}_{\Delta \cdot T_2} = 2\sqrt{1+s_0} \tag{1.4.33}$$

où FWHM correspond à *Full Width Half-Maximum*, soit la largeur à mi-hauteur, ici exprimée en fonction de $\Delta \cdot T_2$.

La largeur de raie augmente donc en racine carrée de la puissance, et la limite de $\mathrm{FWHM}_{\Delta \cdot T_2}$ aux faibles puissances est 2. Si on se ramène à la largeur en fréquence, elle est donc égale à $\frac{1}{\pi T_2}$. On pourra donc utiliser cette valeur pour estimer T_2.

1.4.6 Diffusions élastique et inélastique

L'intensité lumineuse émise par le système à deux niveaux est en fait constituée de deux composantes correspondant à deux processus distincts.

Principe général : On peut réécrire les opérateurs dipolaires $S_\pm$ définis au paragraphe 1.4.4 sous la forme :

$$S_\pm(t) = \langle S_\pm(t) \rangle + \delta S_\pm(t) \tag{1.4.34}$$

où $\langle S_\pm(t) \rangle$ est la valeur moyenne de $S_\pm$ et $\delta S_\pm(t) = S_\pm(t) - \langle S_\pm(t) \rangle$ l'écart à la valeur moyenne, ce qui signifie que :

$$\langle \delta S_\pm(t) \rangle = 0 \tag{1.4.35}$$

On sépare ainsi le dipôle en deux composantes. La première correspond au dipôle moyen $\langle S_\pm(t) \rangle$ qui est constant dans le référentiel tournant à ω_L. Ce dipôle est donc totalement asservi au champ excitateur et oscille avec une phase déterminée par le laser d'excitation. Le rayonnement émis par cette composante peut donc interférer avec l'onde incidente, c'est pourquoi on parle de *diffusion cohérente* ou *élastique* pour décrire l'origine du rayonnement dû à $\langle S_\pm(t) \rangle$. La seconde composante est reliée aux fluctuations $\delta S_\pm(t)$ de $S_\pm$ par rapport au dipôle moyen et rayonne un champ dont la phase n'est pas bien définie par rapport au laser d'excitation puisqu'il correspond précisément aux fluctuations par rapport à cette phase. On parle alors de *diffusion incohérente* ou *inélastique*.

Régime stationnaire et dépendance en puissance d'excitation : Nous nous plaçons à présent en régime stationnaire, ce qui ne sera pas systématiquement précisé. Tout d'abord, l'intensité émise s'écrit :

$$\langle I \rangle \propto \langle S_+ S_- \rangle = \underbrace{\langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle}_{\text{diffusion élastique}} + \underbrace{\langle \delta S_+ \delta S_- \rangle}_{\text{diffusion inélastique}} \tag{1.4.36}$$

Si l'on appelle ces deux composantes $\langle I_{\text{él}} \rangle$ et $\langle I_{\text{inél}} \rangle$, on peut les calculer en utilisant les relations (1.4.20), (1.4.23) et (1.4.29) :

$$\begin{aligned} \langle I_{\text{él}} \rangle \propto \langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle = \left| \langle S_+ \rangle \right|^2 &= \left| \tilde{\rho}_{eg}^{(\text{st})} \right|^2 \\ &= \frac{1}{2} \cdot \frac{T_2}{2\,T_1} \cdot \frac{s}{(1+s)^2} \end{aligned} \tag{1.4.37}$$

$$\begin{aligned} \langle I_{\text{inél}} \rangle \propto \langle S_+ S_- \rangle - \left| \langle S_+ \rangle \right|^2 &= \tilde{\rho}_{ee}^{(\text{st})} - \left| \tilde{\rho}_{eg}^{(\text{st})} \right|^2 \\ &= \frac{1}{2} \cdot \frac{(1 - \frac{T_2}{2\,T_1})\, s + s^2}{(1+s)^2} \end{aligned} \tag{1.4.38}$$

Ces deux quantités sont représentées en fonction de s sur le graphe supérieur de la figure 1.11, ainsi que l'intensité totale — qui est la somme des deux. À basse puissance, c'est la diffusion élastique qui est prépondérante : elle évolue linéairement avec la puissance alors que la diffusion inélastique évolue quadratiquement. Au passage de la saturation, le comportement de la diffusion élastique s'inverse et commence à diminuer jusqu'à disparaître à la limite des hautes puissances. Ceci est lié au fait que lorsque l'on augmente la puissance, l'inversion de population tend vers 0, ce qui signifie que les deux niveaux sont également peuplés et que le dipôle moyen induit est neutralisé, ne laissant que la diffusion inélastique sur les fluctuations de ce dipôle moyen.

Ainsi le graphe inférieur de la figure 1.11 représente la proportion d'intensité diffusée élastiquement en fonction du paramètre de saturation s. Elle est estimée par le rapport de l'intensité diffusée élastiquement (expression (1.4.37)) sur l'intensité totale émise (expression (1.4.31)), qui s'exprime :

$$\frac{\langle I_{\text{él}} \rangle}{\langle I \rangle} = \frac{T_2}{2\,T_1} \cdot \frac{1}{1+s} \tag{1.4.39}$$

On remarquera en particulier que la limite à basse puissance ($s \to 0$) de ce rapport est $\frac{T_2}{2\,T_1}$. La figure 1.12 montre l'allure de $\frac{\langle I_{\text{él}} \rangle}{\langle I \rangle}$ pour différentes valeurs de $\frac{T_2}{2\,T_1}$. Cela signifie qu'aussi basse que puisse être la puissance d'excitation, les processus de déphasage pur continuerons de jouer un rôle car ils sont a priori indépendants de la puissance d'excitation. En revanche, le déphasage lié au déclin en population sera éliminé puisque celle-ci tend vers 0 dans la limite de basse puissance.

Ce régime de basse puissance est appelé régime de *diffusion Rayleigh résonnante*. La dépendance en puissance est alors linéaire et la diffusion élastique est prépondérante dans le cas d'un émetteur pour lequel $\frac{T_2}{2\,T_1} \lesssim 1$.

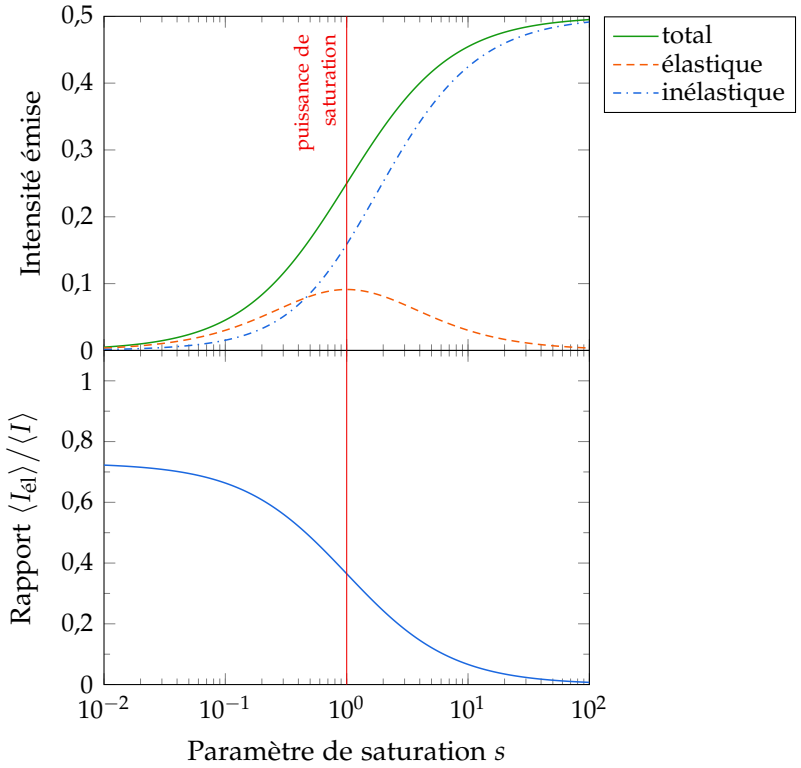


FIGURE 1.11 — *En haut :* calcul des intensités totale, diffusée élastiquement et inélastiquement, en fonction de la puissance d'excitation représentée ici par le paramètre de saturation. L'unité est la population de l'état excité. *En bas :* rapport entre l'intensité diffusée élastiquement et l'intensité totale émise par le système à deux niveaux. Pour ces deux graphes, les temps T_1 et T_2 utilisés correspondent aux temps de la boîte QDIII-bis établis au chapitre 3, c'est-à-dire $T_1 = 0{,}37$ ns et $T_2 = 0{,}54$ ns, soit $\frac{T_2}{2\,T_1} = 73\%$.

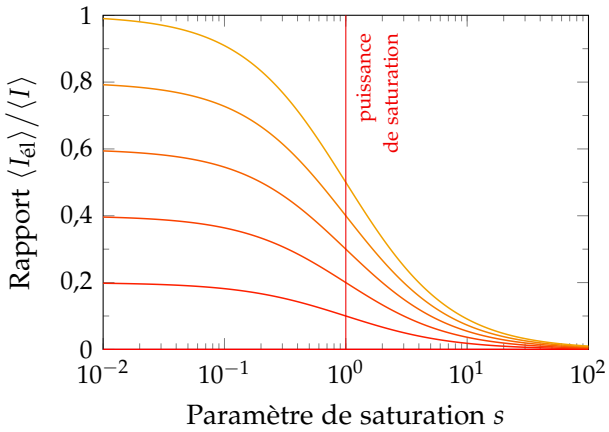


FIGURE 1.12 — Évolution du rapport entre l'intensité diffusée élastiquement et l'intensité totale, en modifiant le rapport $\frac{T_2}{2\,T_1}$ qui, de bas en haut, va de 0 à 1, par pas de 0,2.

Conclusion du chapitre

Les boîtes quantiques forment un piège pour les porteurs de charge, de dimensions petites devant leur longueur d'onde de De Broglie, ce qui impose une discrétisation de leurs niveaux d'énergie. De telles structures nanométriques peuvent être fabriquées de différentes façons, par voie chimique pour les nanocristaux colloïdaux, par voie épitaxiée pour les boîtes quantiques auto-organisées telles que les boîtes en InAs que nous utilisons. Dans ce dernier cas, les boîtes sont fabriquées avec un semiconducteur à faible bande interdite (gap) tel que l'InAs, au sein d'un semi-conducteur à grand gap tel que le GaAs. Elles sont donc entourées par un semiconducteur massif et une couche de mouillage en InAs qui est puits quantique subsistant du processus de fabrication. Cet environnement forme des continuums d'états dans lesquels un laser d'excitation à haute énergie (typiquement au-delà de 1,5 eV ou sous 800 nm) peut être absorbé très efficacement et créer de nombreuses paires électron–trou dont certaines relaxent et finissent piégées dans les niveaux discrets de la boîte quantique, à plus basse énergie.

Les mécanismes de relaxation que nous avons répertoriés ont été de vastes sujets de débats depuis les années 1990. Ils permettent la capture et le piégeage des charges depuis le continuum vers la boîte quantique, mais également la relaxation très efficace de l'énergie entre les niveaux discrets à l'intérieur du piège. Ce dernier point a été l'objet de multiples études qui ont mené notamment à la découverte du couplage fort exciton–phonon dans les boîtes (polarons excitoniques).

Si ces mécanismes de relaxation permettent en bout de chaîne l'émission de photons par la transition $S_e - S_h$, les fluctuations de l'environnement électrostatique en particulier dégradent la cohérence de la transition du dipôle excitonique et des photons émis. Cela peut être considérablement amélioré en utilisant une excitation résonnante à l'énergie de la transition, qui crée l'exciton directement dans les niveaux de plus basse énergie de la boîte quantique sans créer de multiples charges dans l'environnement. Un tel système peut être décrit par le modèle du système à deux niveaux, dans lequel les processus de décohérence résiduels sont pris en compte en utilisant le temps de déphasage pur T_2^*.

Le modèle du système à deux niveaux est étudié sous l'approche semi-classique, avec les équations de Bloch. Il permet dès ce chapitre de décrire certains comportements tels que le régime de diffusion Rayleigh (puissance d'excitation faible devant la puissance de saturation) dans lequel les photons du laser d'excitation sont diffusés élastiquement. Le laser pouvant être extrêmement monochromatique, cela signifie que cette grande cohérence est alors transférée sur les photons de photoluminescence. Comme l'émission d'une boîte quantique est une émission de photons uniques, c'est-à-dire que la probabilité de détecter deux photons simultanément est nulle, on parle parfois de tourniquet à photons, les photons du laser n'étant diffusés qu'un par un.

Pour observer les photons émis par le système à deux niveaux, il faut pouvoir détecter l'émission d'une boîte quantique unique. De plus, l'excitation à la résonance est difficile expérimentalement, le laser d'excitation pouvant être 8 ordres de grandeur plus intense que l'émission de la boîte quantique. Le montage expérimental, les échantillons utilisés et les mesures de caractérisation de base seront décrits au prochain chapitre.

2 Montage de microphotoluminescence et d'excitation résonnante

L'intensité de la photoluminescence d'une boîte quantique unique est très faible, quelques dizaines de millions de photons par seconde au plus, ce qui représente quelques picowatts. Détecter et caractériser la luminescence d'une boîte quantique unique est donc délicat et il est absolument nécessaire de prévenir et de filtrer tout signal parasite qui pourrait s'ajouter au signal de photoluminescence.

Le montage de microphotoluminescence est conçu pour la détection de la photoluminescence d'un objet unique, ce qui passe par des conditions d'excitation controlées et des étapes de filtrage spatial et spectral de la lumière collectée. Dans cette thèse nous nous intéresserons en particulier à l'excitation résonante, où le laser d'excitation et le signal de photoluminescence sont à la même énergie et ne peuvent donc pas être séparés spectralement. Avec un montage de microphotoluminescence conventionnel, le laser d'excitation rétroréfléchi vers le système de détection peut être 8 ordres de grandeur plus intense que le signal de photoluminescence. Observer celui-ci nécessite donc des dispositions particulières : notre montage consiste à disposer le faisceau d'excitation orthogonalement à l'axe optique du système de détection, ce qui réduit considérablement le signal parasite et permet parfois de s'en affranchir complètement.

Ce montage permet donc de collecter le signal de photoluminescence d'un objet unique dans toutes les conditions d'excitation. Nous pouvons ainsi mener une batterie très large de mesures de caractérisation des boîtes, étape indispensable avant de s'intéresser plus en détails aux propriétés des photons de photoluminescence qui nous occuperons dans les chapitres suivants.

2.1 Montage de microphotoluminescence 44
2.2 Dispositif d'excitation résonnante 52
2.3 Mesures de caractérisation 62
Conclusion du chapitre 74

2.1 Montage de microphotoluminescence

Que ce soit en excitant de manière résonnante ou à haute énergie, le signal lumineux provenant d'une boîte quantique unique est très faible, entre 10^3 et 10^7 photons/s, ce qui représente de 10^{-16} à 10^{-12} W*. L'un des aspects expérimentaux les plus cruciaux sera donc d'isoler ce signal du fond parasite qui peut être lié à des imperfections du montage, d'autres boîtes au voisinage de celui que l'on cherche à étudier ou même la luminescence naturelle du cristal lorsque l'on excite de manière non-résonnante.

2.1.1 Description générale

Le principe général d'un montage de microphotoluminescence est de pouvoir exciter un échantillon et collecter sa luminescence. La figure 2.1 présente le schéma du montage en faisant abstraction des optiques de focalisation. Le laser d'excitation est amené sur l'échantillon par le même chemin depuis lequel on détecte la luminescence ; on utilise une séparatrice pour séparer ces chemins.

On notera aussi la présence d'un polariseur et d'une lame demi-onde, qui permettent d'analyser la luminescence en polarisation.

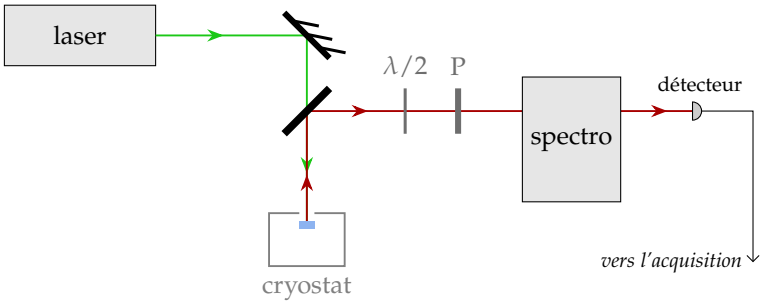


FIGURE 2.1 — Schéma de principe du montage de microphotoluminescence. Le composant noté P est un polariseur, $\lambda/2$ est une lame biréfringente demi-onde.

2.1.2 Détails techniques généraux

Cryostat

Afin d'observer la luminescence de boîtes InAs, il est nécessaire d'opérer à basse température, inférieure à quelques dizaines de kelvins. Nous utilisons pour cela un cryostat à circulation continue d'hélium liquide Oxford Instruments Microstat

* Ces niveaux de signaux correspondent à ce que nous détectons au niveau des photodiodes derrière un montage de détection complet. Sont donc prises en compte les transmissions des différentes optiques et l'efficacité des détecteurs (cf. paragraphe 2.1.2, p. 48).

HiRes, modifié par Pascal Morfin et Jack Olejnik, ingénieurs au service mécanique du département. Une extension de la chambre à vide a été conçue et fabriquée afin d'y placer un porte-échantillon et le montage d'excitation résonnante qui comporte notamment un porte-fibre et des cales piézo-électriques cryogéniques et prévues pour l'ultra-vide, qui serviront pour le montage d'excitation résonnante détaillé à la section 2.2 (p. 52).

Sources laser

Laser He-Ne : Pour l'excitation non-résonnante, nous utilisons un laser He-Ne Melles Griot 05-LHP-825 émettant dans le rouge à 632,8 nm. Il délivre de l'ordre de 20 mW, n'est pas stabilisé, est fortement multimode et émet également d'autres raies que l'on filtre à l'aide d'un filtre passe-bande dédié.

Les diodes laser à cavité externe sont des sources extrêmement utiles car leur cohérence est très bien contrôlée, dépendant essentiellement de la cavité, et leur longueur d'onde est accordable. La sélection de la longueur d'onde se fait à l'aide d'un réseau de diffraction présent dans la cavité.

Nous utilisons ces diodes laser pour exciter en continu à la résonance — d'où l'importance de l'accordabilité puisque les boîtes absorbent à des énergies très variables entre les échantillons mais aussi au sein d'un même échantillon.

Diodes laser New Focus : Nous disposons de deux diodes laser New Focus Velocity, une TLB-6319 pouvant aller de 930 à 945 nm avec une puissance moyenne de 100 mW et une TLB-6320 pouvant aller de 960 à 995 nm avec une puissance maximale de 150 mW. Ces diodes sont pilotées par un module de commande TLB-6300-LN.

L'accordabilité se fait à l'aide d'un réglage grossier et d'un réglage fin. Le réglage grossier fait tourner le réseau de diffraction sur l'ensemble de la plage d'accordabilité. Le réglage fin permet de s'accorder sur une plage de 50 GHz (0,15 nm), à l'aide d'une cale piézoélectrique qui change la longueur de la cavité. À titre de comparaison, les largeurs de raie typiques des boîtes sont de l'ordre de 1 GHz.

La cohérence de ces deux sources est très bonne puisque la spécification nous donne une largeur de raie inférieure à 300 kHz, ce qui fait une cohérence de l'ordre du kilomètre (plusieurs microsecondes).

Diode laser Toptica : L'autre source pour l'excitation résonnante continue est une diode laser Toptica DL Pro 940 accordable de 910 à 985 nm avec une puissance maximale de 107 mW à 975 nm. La plage d'accordabilité fine sans saut de mode peut aller de 15 à 30 GHz.

La largeur spectrale est de l'ordre de 100 kHz, mais le courant d'alimentation de cette diode peut être modulée sur une bande très large, par exemple avec un bruit

blanc. On peut ainsi contrôler sa cohérence en la dégradant à l'aide d'une source de bruit.

Laser titane:saphir Spectra-Physics : La dernière source laser dont nous disposons est un laser titane:saphir Spectra-Physics Tsunami, prévu pour un régime impulsionnel en verrouillage de modes. Nous l'utilisons en configuration picoseconde, avec un ensemble de miroirs permettant le fonctionnement entre 840 et 900 nm. Il sert surtout aux spectres d'excitation et aux mesures de temps de vie détaillées au paragraphe 2.3.5 (p. 71).

La largeur typique des impulsions est de 2 à 5 ps, avec une cadence de répétition de 82 MHz, soit 12 ns entre chaque impulsion. Suivant la longueur d'onde, la durée des impulsions est modifiée. Pour la mesurer et l'optimiser, nous utilisons un autocorrélateur décrit au paragraphe suivant.

La zone où le laser est le plus performant se situe aux alentours de 900 nm. La puissance typique en sortie varie entre quelques centaines de milliwatts et 1 W, avec une puissance de pompe entre 7 et 10 W.

Autocorrélateur

Pour caractériser les impulsions du laser Ti:Sa, il est impossible de les observer directement étant donné qu'il faudrait un photodétecteur et une électronique de détection dont la bande passante atteint plusieurs térahertz (les impulsions étant de l'ordre de la picoseconde). On ne mesure donc pas directement le profil temporel de l'intensité mais l'autocorrélation de l'intensité à l'aide d'un montage appelé autocorrélateur.

L'autocorrélateur repose sur des effets non-linéaires. Comme représenté sur le schéma de la figure 2.2, il consiste à focaliser deux faisceaux provenant du laser dans un cristal non-linéaire. Le doublage de fréquence n'a lieu que lorsque les impulsions des deux faisceaux arrivent simultanément dans le cristal. Pour un retard donné, l'intensité à 2ω est alors proportionnelle à un point de la fonction d'autocorrélation du faisceau à ω.

Si le cristal est correctement taillé et orienté, l'accord de phase sera assuré suivant la bissectrice de l'angle formé par les deux faisceaux incidents. En effet, on a $\omega_{\text{autocor}} = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega$ (ω étant la pulsation), d'où la condition d'accord de phase $\vec{k}_{\text{autocor}} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$ ($\vec{k}$ étant le vecteur d'onde).

Cependant, la superposition des deux impulsions incidentes correspond en général à un retard assez précis. En tournant le cristal, on commencera par chercher les deux angles assurant l'accord de phase pour chacun des deux faisceaux indépendamment. L'angle permettant d'observer le signal d'autocorrélation sera suivant la bissectrice. Pour ces réglages, il est très utile d'utiliser une caméra CCD en avant ou en arrière du point de focalisation pour identifier les différentes taches d'intensité à 2ω. Une

fois l'accord de phase trouvé, on mesure l'autocorrélation de l'intensité en fonction du temps en modifiant le retard et en suivant les variations de l'intensité à 2ω.

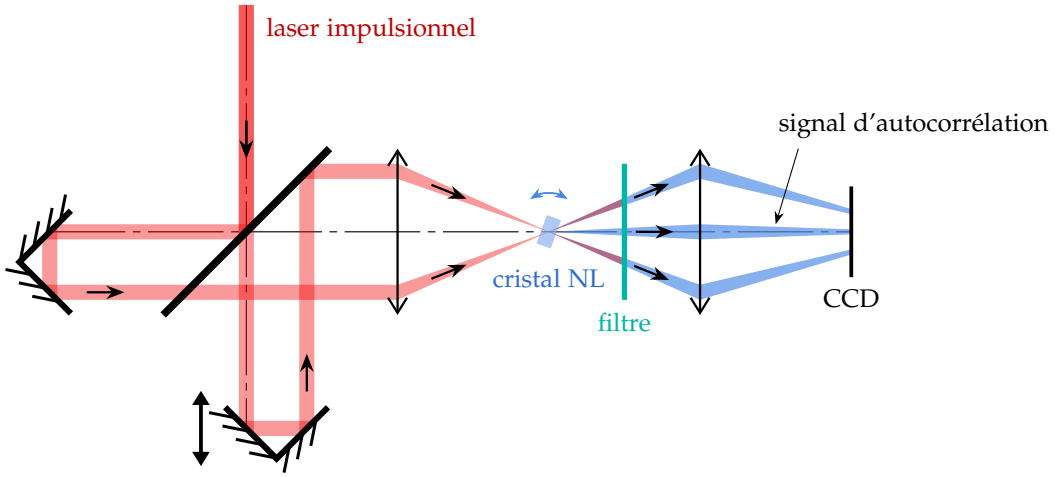


FIGURE 2.2 — Schéma de l'autocorrélateur.

Détecteurs

Nous utilisons deux types de détecteurs : d'une part les photodiodes à avalanche qui permettent de mesurer des flux de photons et de faire des mesures de corrélation, et d'autre part une caméra CCD permettant en particulier de mesurer des spectres.

Photodiodes à avalanche (APD) : Les flux de photons à détecter peuvent être très faibles — quelques centaines de photons par seconde. De plus nous avons besoin de mesurer les corrélations entre les instants de détection de chaque photon. Cela nécessite des détecteurs avec très peu de coups noirs et un temps de réponse et une gigue très faibles*.

Les détecteurs que nous utilisons sont des photodiodes à avalanche (*avalanche photodiode*, APD) Perkin-Elmer SPCM-AQRH-16 qui possèdent une électronique de détection délivrant une impulsion TTL ($0-5$ V) lors de la détection d'un photon. Ce détecteur possède une résolution temporelle typique de 350 ps, et un nombre de coups noirs très faible, de l'ordre de 25 coups/s. Son temps mort après détection d'un photon est de 20 à 40 ns. L'efficacité de détection est la probabilité globale d'émission d'une impulsion TTL pour un photon incident. Pour $\lambda = 950$ nm, l'efficacité de détection vaut environ 25%.

* Dans notre cas il faut que le temps de réponse et la gigue des détecteurs soient petits devant le temps de vie des boîtes, qui varie typiquement entre 0,1 et 1 ns.

Afin de mesurer le flux de photons détectés par un détecteur, nous disposons d'un compteur d'impulsions TTL fabriqué au Laboratoire Pierre Aigrain par Anne Denis, ingénieur au service électronique. Il dispose de deux entrées permettant de compter le nombre de photons détectés par deux APD en parallèle, sur un temps d'intégration variable pouvant être choisi par l'utilisateur.

Caméra CCD : La caméra CCD utilisée est une Andor iDus DU420A-OE prévue pour la spectrométrie. Elle dispose d'un refroidissement par Peltier pouvant aller jusqu'à −50°C (voire −100°C en l'assistant avec un refroidissement par eau). Avec des temps d'intégration de l'ordre de la seconde, le bruit thermique est alors totalement négligeable. La série -OE (pour *open electrode*) possède un capteur qui souffre de moins de bruit de lecture, au prix d'une efficacité quantique plus faible dans le visible et le proche infrarouge. Cette technologie élimine également les franges d'interférences qui peuvent avoir lieu dans le capteur derrière un spectromètre.

Bilan de transmission des optiques

Le montage de micro-photoluminescence décrit au début de cette section est le montage de détection classique que nous utilisons, et il est important d'estimer la transmission et l'efficacité de détection de notre montage. Répertorions les différentes optiques impliquées et leur transmission :

- la fenêtre du cryostat en saphir qui transmet 85%,
- l'objectif de microscope du confocal qui transmet 63%,
- la séparatrice du confocal qui réfléchit 90% du signal vers le montage de détection,
- plusieurs lentilles transmettant entre 85% et 95% — nous compterons cinq lentilles transmettant 90% en moyenne,
- plusieurs miroirs réfléchissant environ 95% — nous en compterons trois,
- la lame demi-onde et le polariseur transmettant 70% pour une polarisation rectiligne au maximum de transmission,
- le spectromètre qui transmet 30% lorsqu'il est attaqué dans la bonne polarisation, on y inclut les lames biréfringentes permettant de mettre en forme la polarisation.

Au total, la transmission de l'ensemble des optiques sera de l'ordre de 5%. À cela il faut ajouter l'efficacité de détection de la photodiode à avalanche, qui est d'environ 25% à 950 nm d'après sa documentation.

Nous ne détectons finalement qu'un peu plus de 1% des photons émis par l'échantillon. Cette efficacité de détection globale du montage est établie par rapport à tous les photons extraits de la structure de l'échantillon, émis dans l'ouverture de l'objectif de microscope. De plus, certains montages comme les interféromètres en intensité

conduiront à diviser par deux ou plus le signal moyen sur les détecteurs.

Ce chiffre est faible et montre combien la marge de progression est importante. En particulier, lorsque l'on travaille à résonance, il n'est pas toujours nécessaire d'utiliser le spectromètre. On peut également limiter le nombre de miroirs en optimisant le chemin de l'échantillon au détecteur. Enfin, dans certains cas on pourra se permettre d'enlever le trou de confocalité et les deux lentilles associées (cf. paragraphe suivant), la fente d'entrée du spectromètre pouvant aussi jouer un rôle de filtrage spatial.

2.1.3 Microscope confocal

Une technique très répandue pour observer des objets uniques est la microscopie confocale. Le principe en est le suivant : d'une part, le laser d'excitation est focalisé à la surface de l'échantillon, dans un volume contenant l'objet à étudier, et d'autre part ce volume est conjugué avec un trou de confocalité au niveau du système de détection, comme on peut le voir sur la figure 2.3. Cette double conjugaison se fait à l'aide d'une lame séparatrice et justifie l'appellation « confocal ». Le microscope confocal permet donc de faire une sélection spatiale au niveau de l'échantillon, en limitant l'excitation et la collection à une zone d'intérêt de l'échantillon, assez petite pour ne contenir qu'un objet unique dans la mesure où la densité de boîtes par unité de surface le permet.

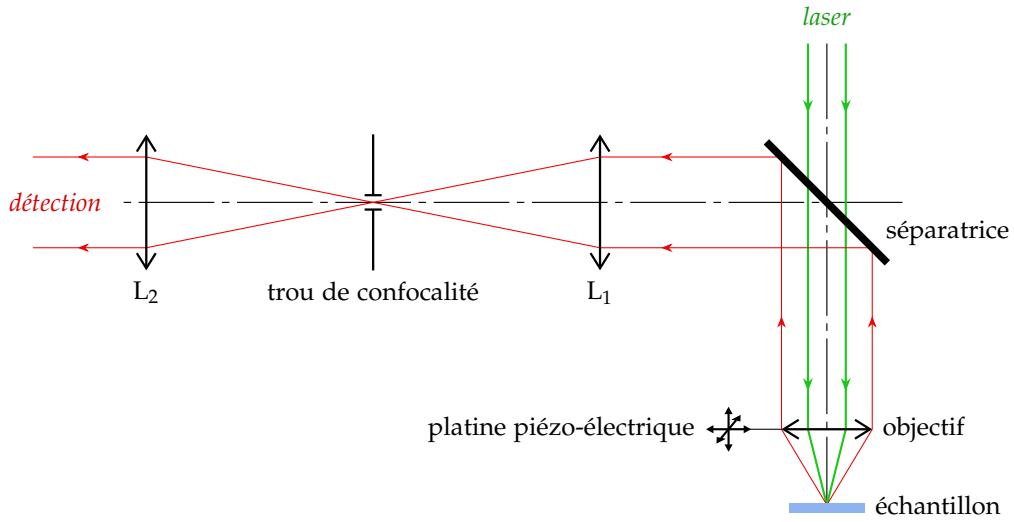


FIGURE 2.3 — Schéma optique d'un microscope confocal.

De manière plus détaillée, le trou de confocalité va définir au niveau de l'échantillon observé un *volume confocal*, qui idéalement se veut proche de la limite de diffraction. Un raisonnement d'optique géométrique s'appuyant sur la figure 2.4 permet de remonter à ce volume confocal V, en fonction du diamètre ϕ de l'image du trou de confocalité par l'objectif de microscope et de l'ouverture numérique ON de

celui-ci (en supposant la profondeur de champ Δ petite devant la focale de l'objectif) :

$$\begin{aligned} V &= \Delta \cdot \frac{\pi\phi^2}{4} \\ &= \frac{\pi\phi^3}{4\,ON} \end{aligned} \tag{2.1.1}$$

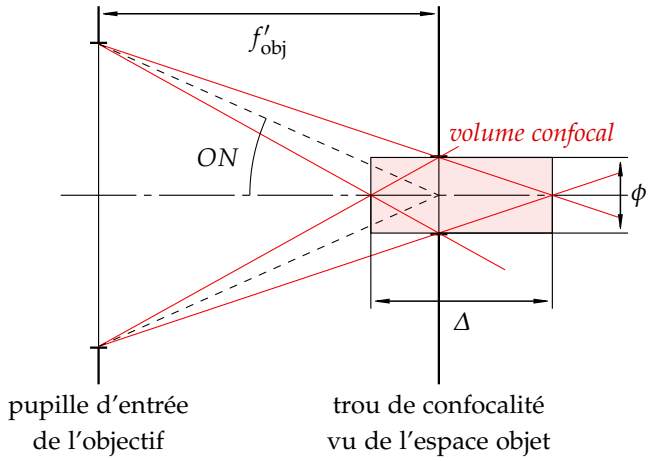


FIGURE 2.4 — Estimation du volume confocal.

Dans le cas où ϕ est à la limite de diffraction, on a $\phi = \frac{1{,}22\lambda}{ON}$. Pour une longueur d'onde $\lambda = 1$ µm et une ouverture $ON = 0{,}3$, nous avons alors un volume confocal de 180 µm^3, étalé latéralement sur un disque de 4 µm de diamètre. Ces dimensions peuvent paraître grandes, mais sont fortement affectées par l'ouverture de l'objectif assez faible ici. Les chiffres utilisés sont ceux de notre objectif de microscope, détaillés au paragraphe suivant (p. 51).

Ensuite, il est préférable de choisir une longue focale pour la lentille L_1 afin de disposer d'une image agrandie de l'échantillon et pouvoir utiliser un trou de taille raisonnable. Par exemple, notre montage utilise un rapport de grandissement de $\gamma = \frac{f'_1}{f'_{\text{obj}}} = \frac{400}{10} = 40$, une tache de diffraction de 4 µm donnera une image de 160 µm de diamètre. Un trou de 200 µm peut ainsi convenir.

Enfin, quelques points expérimentaux sont à préciser :

- le microscope confocal a deux fonctions : focaliser l'excitation dans un petit volume de l'échantillon et limiter la collection à ce même volume. Le laser d'excitation se réfléchit en partie sur l'échantillon et est collecté par le système de détection, il faut donc le filtrer de manière à ne pas éblouir les détecteurs. Pour une excitation non-résonnante, on utilisera un filtre spectral coupant le laser et transmettant le signal. Pour l'excitation résonnante, nous modifierons le montage comme nous le verrons à la section 2.2 ;
- suivant la nature de l'objet observé, le signal utile peut ne pas couvrir toute la pupille de l'objectif de microscope, qui ne définit alors plus l'ouverture et la

limite de diffraction. Il peut être important d'agrandir le trou de confocalité pour s'adapter à cette plus petite ouverture ;
- enfin, il est possible d'utiliser des fibres optiques monomodes en guise de trou de filtrage. Dans le cas où le signal d'émission est couplé à une fibre optique monomode, le trou de confocalité devient redondant et peut être retiré.

Objectif de microscope

L'objectif de microscope utilisé est un objectif Nachet PL LD, ce qui signifie qu'il est corrigé dans le champ et possède une longue distance de travail de 17 mm, une focale de 10 mm, un grandissement* de 20 et une ouverture numérique de 0,3.

L'objectif de microscope est monté sur une platine de translation piézo-électrique à 3 axes de PI (P-611.3S NanoCube) indiquée sur la figure 2.3. Chaque axe a une course de l'ordre de 100 µm. La cale Z permet de régler la position longitudinale de l'objectif (le focus). Les cales X et Y permettent de déplacer l'objectif latéralement, parallèlement à la surface de l'échantillon. Cela permet d'optimiser le placement du volume confocal sur l'objet à observer en maintenant le trou de confocalité conjugué avec le point de focalisation du laser d'excitation.

Utilisation de fibres optiques monomodes

Utiliser des fibres optiques offre de nombreux avantages pour l'expérimentateur. Le plus évident est qu'elles permettent d'amener le signal sur différents étages d'expérimentation très facilement. De plus, un montage où les différents étages sont connectés à l'aide de fibres est beaucoup plus robuste au désalignement.

Pour se coupler idéalement dans une fibre, il faut adapter l'ouverture de la fibre ON_{fibre} au diamètre du faisceau ϕ_{faisceau}, comme on peut le voir sur la figure 2.5. Il faut donc choisir la focale du coupleur f'_{c} de manière à ce que :

$$f'_{\text{c}} = \frac{\phi_{\text{faisceau}}}{2\,ON_{\text{fibre}}} \tag{2.1.2}$$

Nous utilisons des fibres à maintien de polarisation, ce qui est pratique pour pouvoir faire de l'interférométrie. Par rapport à des fibres monomodes standard, cela simplifie l'utilisation, en particulier pour pouvoir brancher et débrancher les diverses parties du montage sans se soucier de la polarisation. Étant donné que nous travaillons entre 920 nm et 980 nm, nous utilisons les fibres Thorlabs 780PM FC/APC qui sont monomodes entre 770 et 1100 nm. Leur ouverture numérique de

* Il s'agit d'un objectif de microscope prévu pour une conjugaison à l'infini. Le grandissement de 20 correspond dans ce cas au grandissement de l'objet en une image formée au foyer d'un oculaire de 200 mm de focale (convention du constructeur). Cela signifie que le grandissement est alors $\gamma = 200\ \text{mm}/f'_{\text{obj}}$, d'où une focale de 10 mm.

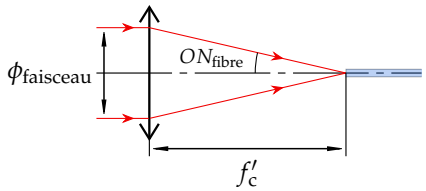


FIGURE 2.5 — Schéma du couplage dans la fibre dans le cas où la focale est adaptée à l'ouverture de la fibre.

0,12 et un diamètre de faisceau maximal de 5 mm nous amènent à choisir une focale au plus de 20 mm.

En pratique, nous utilisons des lentilles asphériques Thorlabs C220TME-B ou A397TM-B qui ont toutes les deux un diamètre utile largement suffisant de 9,24 mm et une focale de 11,0 mm. Une focale de 11 mm $<$ 20 mm correspond à un diamètre de faisceau idéal de 3 mm. Il s'agit d'un compromis : nous verrons en effet au paragraphe 2.2.1 (à partir de la page 54) que le diamètre des faisceaux issus de nos échantillons est assez variable et ne couvre pas nécessairement toute l'ouverture de l'objectif. Les faisceaux dont le diamètre est de 5 mm se coupleront donc moins bien, mais les faisceaux plus fins se coupleront mieux.

2.2 Dispositif d'excitation résonnante

L'une des particularités de notre montage est de permettre d'exciter de façon résonnante une transition. La difficulté d'exciter à la résonance vient du fait que le laser d'excitation et le signal à observer se situent à la même longueur d'onde. On ne peut donc pas les séparer spectralement à l'aide de filtres ou d'un spectromètre. De plus, il suivent le même chemin dans la géométrie confocale exposée plus haut, et la réflexion résiduelle du laser dans les optiques amène un signal parasite environ 8 ordres de grandeurs plus grand que le signal de photoluminescence émis par les boîtes*.

Diverses techniques existent pour exciter une boîte quantique à la résonance. Il est possible d'utiliser un microscope en champ sombre, c'est-à-dire de détecter la polarisation orthogonale au laser, mais cela est très exigeant sur les facteurs d'extinction, qui sera typiquement de 10^{-6} pour un polariseur de Glan–Thompson,

* Typiquement, on cherche à observer des signaux qui ne sont que de l'ordre de 10^4 photons/s à une longueur d'onde de 1 µm, ce qui est de l'ordre de 1 fW. Ceci est à comparer au laser d'excitation qui est de l'ordre de 100 nW dans le meilleur des cas, le laser étant réfléchi sur les surfaces optiques traversées, à la surface de l'échantillon et diffusé par toutes les imperfections qui peuvent se trouver dans le chemin du faisceau. Ces chiffres proviennent, d'une part, de la puissance du signal de photoluminescence le plus faible que nous avons exploité, d'autre part, de la puissance de laser non-résonnant rétroréfléchie dans le système de détection pour obtenir ce même niveau de signal.

et rend délicates les études en polarisation [Nick Vamivakas *et al.* 2009].

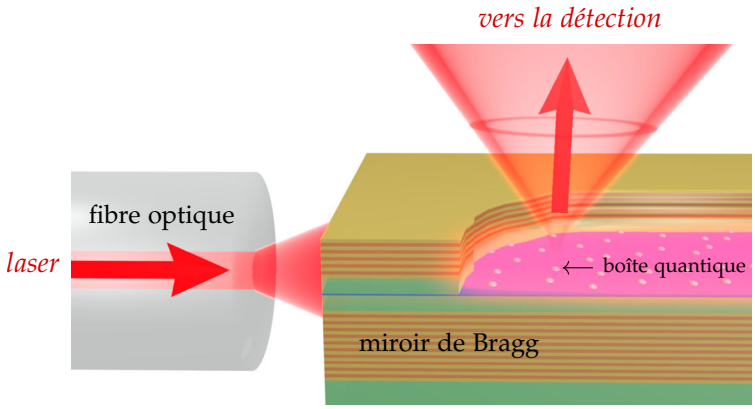


Figure 2.6 — Montage d'excitation résonnante.

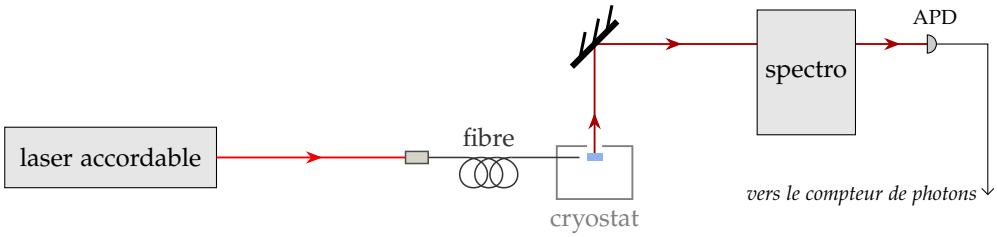


Figure 2.7 — Schéma de principe du montage d'excitation résonnante. La source laser est en général une diode laser accordable.

Notre montage utilise une technique de séparation spatiale, dans laquelle la direction d'excitation est orthogonale à la direction de détection [Muller *et al.* 2007 ; Nguyen *et al.* 2011], dont le principe est représenté sur les figures 2.6 et 2.7. Lors de la fabrication de l'échantillon, les boîtes sont placées au centre d'une microcavité planaire formée de deux miroirs de Bragg. Une fibre optique amène le laser d'excitation résonnant sur la tranche de la microcavité, et celle-ci le guide jusqu'à la boîte. On assure ainsi un bon couplage de la boîte au champ d'excitation, sans éclairer le système de détection. La taille de la cavité est choisie de manière à ce que la lumière émise par la boîte quantique se couple, elle, dans un mode transmis dans l'ouverture de l'objectif de microscope. Le signal de photoluminescence collecté par l'objectif de microscope est ensuite dirigé vers le montage de détection, ici représenté par un simple spectromètre et un détecteur.

L'échantillon est donc excité par la tranche à l'aide d'une fibre optique. Cette fibre optique est une fibre Thorlabs 780HP nue, monomode entre 780 et 970 nm. Elle a une gaine de 125 µm.

La fibre est injectée à l'aide d'un objectif de microscope Olympus LMPlan IR 20× corrigé à l'infini, dont la frontale vaut 8,1 mm et la focale 9 mm. Elle entre

ensuite dans le cryostat et est fixée sur une platine piézo-électrique cryogénique pour ultra-vide Attocube ANSxyz100, avec trois axes de déplacement sur des plages de $30 \times 30 \times 15$ µm^3 à 4 K et une résolution sub-nanométrique. Cette platine permet de positionner précisément la sortie de la fibre par rapport à la tranche de l'échantillon.

L'échantillon est fabriqué par épitaxie par jets moléculaires (*molecular beam epitaxy*, MBE). Les boîtes sont fabriquées par la méthode Stranski-Krastanov exposée au paragraphe 1.2.1 (p. 21).

2.2.1 Échantillon en microcavité planaire

La microcavité planaire assure donc deux fonctions : d'une part elle guide le laser d'excitation depuis la tranche de l'échantillon jusqu'à la boîte, et d'autre part elle redirige l'émission de la boîte dans l'ouverture de l'objectif de microscope. Les conditions de guidage ne posent généralement pas de problème et ne gouvernent pas la conception de la cavité. Il faut en revanche centrer le mode transmis par la cavité sur la distribution d'énergie d'émission des boîtes.

Les paragraphes suivants décrivent d'abord les structures de microcavité utilisées dans les deux échantillons étudiés dans cette thèse, puis mettent en évidence l'intérêt d'utiliser une microcavité planaire : guider l'excitation et améliorer la détection.

Échantillon A : microcavité planaire

Le premier échantillon utilisé dans ce travail de thèse sera appelé *échantillon A*. Il s'agit d'un ancien échantillon utilisé par Ivan Favero [Favero 2005, cf. § 2.2, p. 54 ; il s'agit de l'échantillon C] et Hai-Son Nguyen [Nguyen 2011] pendant leur thèse.

Plan de boîtes quantiques InAs/GaAs : Cet échantillon a été fabriqué par l'équipe de Pierre Petroff au *Materials Department* de l'Université de Santa Barbara (Californie, États-Unis). Il possède les caractéristiques suivantes :

- densité de boîtes moyenne de 10^7 boîtes/cm^2 à 10^{10} boîtes/cm^2,
- distribution en énergie entre 1,24 et 1,30 eV avec un maximum à 1,27 eV (soit entre 950 et 1000 nm avec un maximum à 975 nm),
- émission par la couche de mouillage à 1,45 eV (855 nm).

Microcavité planaire AlAs/AlGaAs : À la fabrication, le plan de boîtes est placé au centre d'une microcavité planaire composée de miroirs de Bragg en AlAs/AlGaAs et d'un cœur de GaAs. On définit tout d'abord λ, la longueur d'onde centrale du mode de cavité en incidence normale, dans un milieu d'indice n. Pour cet échantillon, on a :

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{n} = \frac{975 \text{ nm}}{n} \tag{2.2.1}$$

On pourra retenir que 975 nm correspond à une énergie de 1,272 eV.

La structure est représentée sur la figure 2.8 et se décrit de la façon suivante de bas en haut :

- le substrat qui est en GaAs,
- 24 paires AlAs/AlGaAs d'épaisseur $\lambda/4$ constituant le miroir du bas,
- le cœur de la cavité en GaAs, d'épaisseur λ,
- 11 paires AlAs/AlGaAs d'épaisseur $\lambda/4$ constituant le miroir du haut.

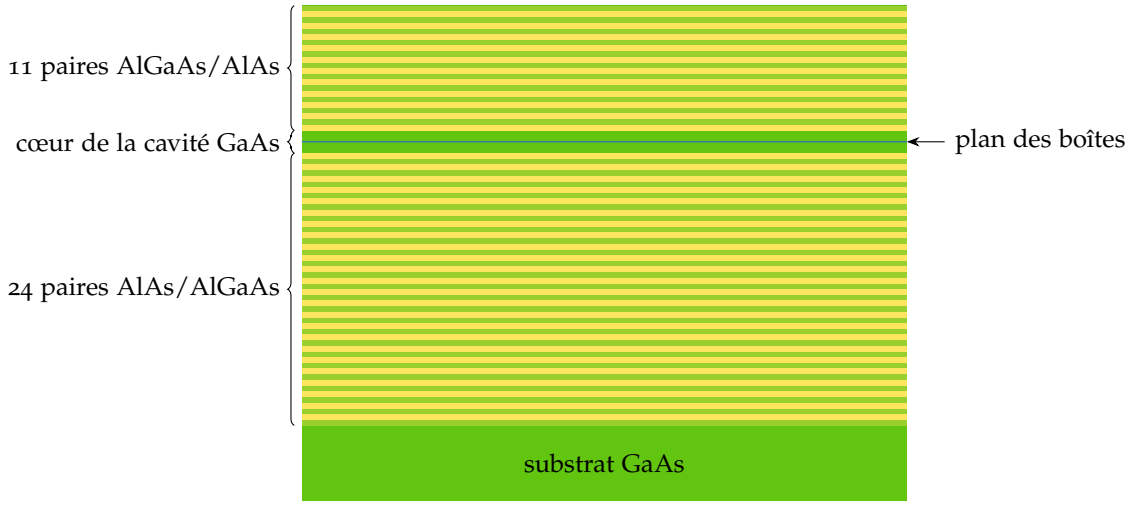


FIGURE 2.8 — Structure de l'échantillon A.

Nous ne disposons pas de la stœchiométrie de l'AlGaAs utilisée pour cet échantillon. Pour fixer les idées, nous prendrons $Al_{0,1}Ga_{0,9}As$ qui reproduit fidèlement les comportements observés expérimentalement.

Les indices à 8 K sont :

$$\begin{aligned} n_{\mathrm{GaAs}} &= 3{,}45 \\ n_{\mathrm{Al_{0,1}Ga_{0,9}As}} &= 3{,}39 \\ n_{\mathrm{AlAs}} &= 2{,}91 \end{aligned} \tag{2.2.2}$$

On utilise à présent la méthode des matrices de transfert pour calculer la réflectivité des miroirs de Bragg [BORN & WOLF 1993, cf. § 1.6, p. 51–70] et un modèle d'étalon Fabry–Pérot classique pour évaluer les caractéristiques de la microcavité planaire.

Tout d'abord, l'intensité réfléchie par la cavité Fabry–Pérot depuis l'extérieur de l'échantillon s'écrit :

$$I_{\mathrm{r}} = I_0 \cdot \left[\frac{r_1 - r_2}{1 - r_1 r_2}\right]^2 \cdot \frac{1 + m' \sin^2\phi}{1 + m \sin^2\phi} \tag{2.2.3}$$

où r_1 et r_2 sont les coefficients de réflexion du champ électrique sur les miroirs du haut et du bas respectivement, depuis l'intérieur de la cavité, et où :

$$m = \frac{4r_1r_2}{(1 - r_1r_2)^2} \qquad m' = \frac{4r_1r_2}{(r_1 - r_2)^2} \qquad \phi = \frac{2\pi n d}{\lambda}\cos\theta \tag{2.2.4}$$

avec d l'épaisseur de la cavité, n l'indice de la cavité, λ la longueur d'onde et θ l'angle avec la normale, dans la cavité. ϕ est donc la phase accumulée en parcourant une épaisseur de cavité.

Cette expression permet de calculer la courbe de réflectivité présentée sur la figure 2.9. Un palier de réflectivité visible entre 1,2 et 1,35 eV correspond à la bande d'arrêt des miroirs de Bragg — zone dans laquelle ils sont fortement réfléchissants. Seul le mode pair de plus basse énergie de la cavité est ici visible, au centre de la bande d'arrêt, les modes à plus haute énergie étant en dehors. Quelques énergies importantes ont été placées afin de mettre cette courbe en perspective : celle de la couche de mouillage, celle du gap du GaAs, à laquelle le GaAs commence à absorber, et l'énergie de l'He-Ne, loin au-dessus du gap, utilisé pour exciter les boîtes de façon non-résonnante par le microscope confocal.

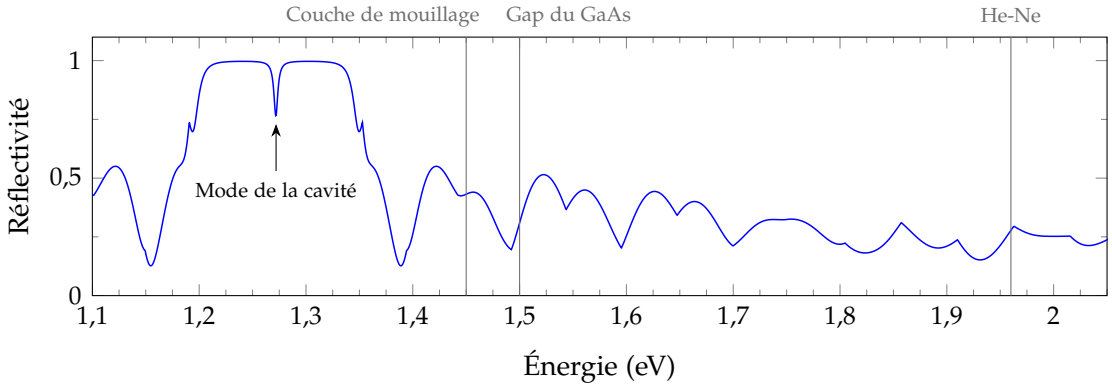


FIGURE 2.9 — Calcul de la réflectivité de la cavité en fonction de l'énergie, pour l'échantillon A. Des énergies typiques sont indiquées pour mettre en perspective la courbe.

Le plan de boîtes étant situé à l'intérieur de la microcavité, la courbe de réflectivité ne permet pas d'évaluer l'efficacité d'extraction liée à la cavité seule. On peut calculer l'intensité extraite de l'échantillon grâce à l'expression suivante :

$$I_{\mathrm{t,\,int}} = I_0 \cdot |t_1|^2 \cdot \left[\frac{1+r_2}{1-r_1 r_2}\right]^2 \cdot \frac{1 - m'' \sin^2\left(\phi(1-a)\right)}{1 + m \sin^2 \phi} \tag{2.2.5}$$

où t_1 est le coefficient de transmission du champ électrique par le miroir du haut depuis l'intérieur de la cavité ; a est la position relative de l'émetteur dans la cavité (pour un émetteur au centre, on prendra $a = 1/2$) et :

$$m'' = \frac{4r_2}{(1+r_2)^2} \tag{2.2.6}$$

Les courbes présentées sur la figure 2.10 sont calculées à l'aide de l'expression (2.2.5). Un émetteur isotrope d'intensité 1 à toutes les énergies (lumière blanche idéale) est placé au centre de la cavité. On observe ensuite les variations de l'intensité

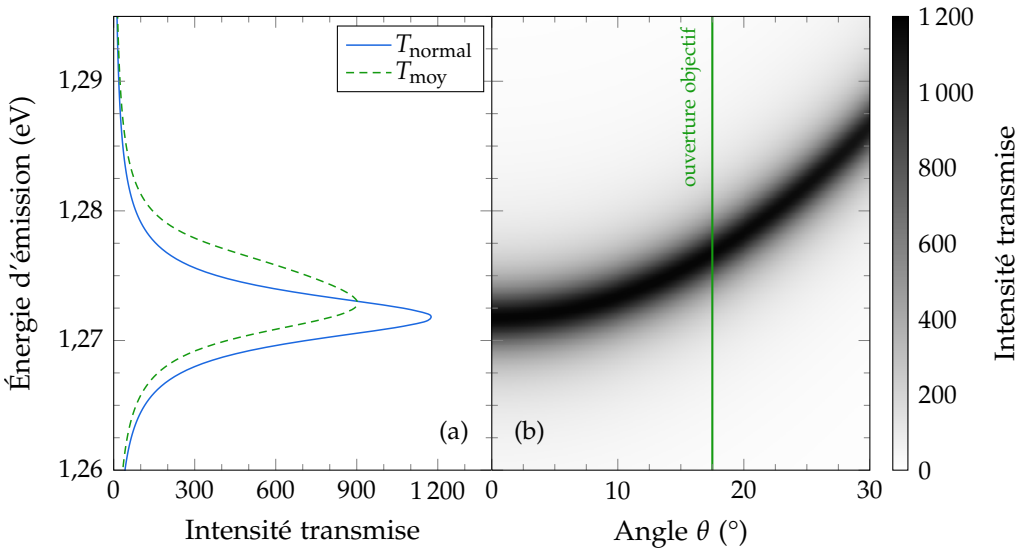


FIGURE 2.10 — Calcul de l'intensité transmise par la cavité. La source se trouve à l'intérieur de la cavité, au centre, et émet une intensité d'amplitude 1 de manière isotrope.

transmise par la cavité en fonction de l'énergie d'émission et de l'angle θ par rapport à la normale à l'extérieur de la cavité*. Il faudra prendre garde au fait que le changement d'indice en sortant de la cavité affecte θ.

Le graphe (a) présente l'intensité transmise en fonction de l'énergie. La courbe bleue continue est l'intensité transmise en incidence normale (T_{normal}), c'est-à-dire à $\theta = 0$. Mais l'intensité transmise dépend de l'angle émergent θ, la courbe verte pointillée représente ainsi l'intensité transmise moyennée sur tous les angles θ de l'ouverture de l'objectif de microscope (T_{moy}).

Le graphe (b) présente la dépendance de l'intensité transmise en fonction de l'angle émergent θ et de l'énergie d'émission. Ainsi comme une boîte émet à son énergie propre, les photons seront transmis suivant une coupe horizontale de la figure à l'énergie d'émission. La ligne verticale correspond à l'angle d'ouverture de l'objectif de microscope (17,5°) correpondant à une ouverture numérique de 0,3. La courbe T_{moy} de la figure (b) est le résultat de l'intégrale de la courbe (b) entre $\theta = 0$ et $\theta = 17{,}5°$. Elle donne donc la répartition en énergie des boîtes pouvant être détectées, dans la fenêtre transmise par la cavité et collectée par l'objectif de microscope.

Le mode de cavité est très large devant la largeur de raie d'une boîte quantique. En incidence normale, le mode transmis a une largeur à mi-hauteur de 4 meV, très grande devant les quelques µeV de largeur typique d'une raie. Si on intègre l'intensité transmise sur l'ouverture de l'objectif de microscope, comme ce qui est présenté sur

* Étant donné que les angles considérés sont petits, les valeurs calculées pour les coefficients de réflexion et de transmission des miroirs ne prennent pas en compte l'angle d'incidence.

la figure 2.10a, la fenêtre de transmission fait environ 10 meV de large.

On notera que l'intensité maximale en sortie vaut 900, à comparer à l'intensité de départ $I_0 = 1$. Si l'on se limite à l'incidence normale, le facteur de concentration $I_{\max}/I_0$ de la cavité s'écrit :

$$\frac{I_{\max}}{I_0} = \left[\frac{t_1(1+r_2)}{1-r_1 r_2}\right]^2 \tag{2.2.7}$$

où r_1 et r_2 sont les coefficients de réflexion en amplitude des miroirs supérieur et inférieur de la cavité, t_1 étant le coefficient de transmission du miroir supérieur. En incidence normale et à λ, nous avons $r_1 = 0{,}9796$, $r_2 = 0{,}9986$ et $t_1 = 0{,}3730$. Cela donne un facteur de concentration de 1170 en incidence normale, cohérent avec la figure 2.10a où l'intensité a été moyennée sur toute l'ouverture de l'objectif.

Boîte quantique étudiée : Nous nous intéresserons dans cette thèse à une seule boîte quantique de cet échantillon, nommée QDIII-bis.

Échantillon B : fils photoniques

Le deuxième échantillon utilisé dans ce travail de thèse sera appelé *échantillon B*. Il s'agit d'un échantillon fabriqué au cours de la thèse par Aristide Lemaitre et Anthony Martinez au Laboratoire de Photonique et Nanostructures (LPN) à Marcoussis, en collaboration avec l'équipe de Valia Voliotis à l'Institut des NanoSciences de Paris (INSP). Cet échantillon est très similaire au précédent, mais après croissance, il a été gravé afin de former des guides d'onde de quelques micromètres de large, visibles sur la figure 2.11. On peut constater que la gravure ne s'est pas passée correctement et a laissé de nombreux résidus dans les zones gravées. L'échantillon visible sur ces images est en réalité l'échantillon de l'INSP — le wafer où a été effectuée la croissance étant partagé entre l'INSP et nous. La seule différence avec la partie que nous avons étudiée est la largeur des fils qui est plus faible, de l'ordre du micromètre alors que la largeur de nos fils va de 3 à 6 µm.

Plan de boîtes quantiques InAs/GaAs : Les caractéristiques sont très proches de celles de l'échantillon précédent, sauf que l'énergie des boîtes est légèrement plus élevée. L'échantillon possède les caractéristiques suivantes :

- une densité de boîtes moyenne de l'ordre de 10^8 boîtes/cm^2 sur les zones que nous avons observées,
- l'énergie se distribue entre 1,30 et 1,35 eV (entre 920 et 950 nm).

Microcavité planaire GaAs/AlGaAs gravée en fils : Le plan de boîtes est ici aussi inséré dans une microcavité planaire avec des miroirs de Bragg en GaAs/$Al_{0,95}Ga_{0,05}As$, autour d'une cavité λ. À la différence de l'échantillon A, la cavité a été fabriquée

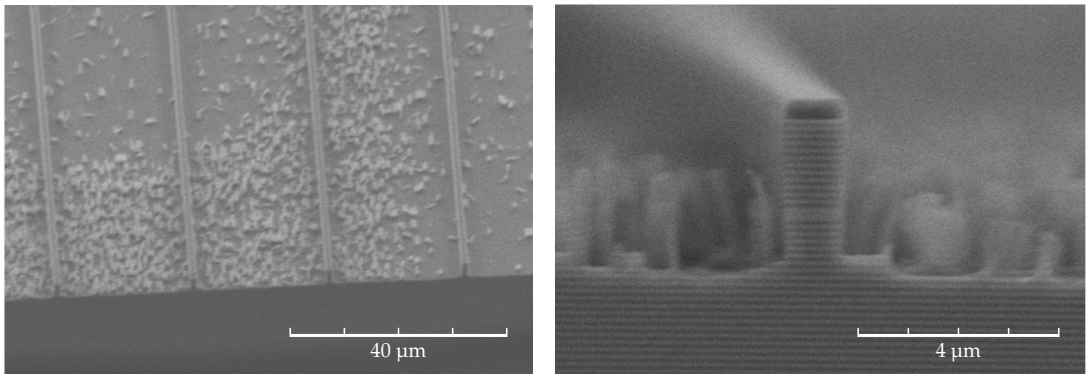


FIGURE 2.11 — Observations de l'échantillon B au microscope électronique à balayage (images du LPN).

avec un gradient d'épaisseur centré sur la distribution de boîtes, entre 910 et 950 nm environ. La distribution en énergie des boîtes étant homogène sur l'ensemble de l'échantillon, ce gradient permet d'avoir avec certitude une zone de l'échantillon où le mode de cavité sera centré sur l'énergie d'émission moyenne de la distribution de boîtes. La zone qui nous intéressera a un mode de cavité entre $\lambda = 940$ nm$/n$ et $\lambda = 950$ nm$/n$, ce qui correspond à 1,305 eV et 1,319 eV.

La structure se décrit de la façon suivante de bas en haut :

- le substrat est en GaAs,
- 24 paires GaAs/AlGaAs d'épaisseur $\lambda/4$ constituant le miroir du bas,
- le cœur de la cavité, d'épaisseur λ,
- 12 paires GaAs/AlGaAs d'épaisseur $\lambda/4$ constituant le miroir du haut.

Les indices à 8 K sont :

$$\begin{aligned} n_{\mathrm{GaAs}} &= 3{,}54 \\ n_{\mathrm{Al_{0,95}Ga_{0,05}As}} &= 2{,}989 \end{aligned} \tag{2.2.8}$$

Cette microcavité est assez similaire à celle de l'échantillon A, l'énergie du mode de cavité étant plus élevée et sa largeur spectrale légèrement plus faible.

Les fils ont des largeurs variables, de 3 µm, 4 µm, 5 µm et 6 µm. Des séries de 10 fils pour chaque largeur se répètent successivement, tous les 10 µm environ.

Le laser qui se couple par la tranche de l'échantillon n'est pas focalisé dans le fil et illumine donc les résidus de gravure. Cela est susceptible d'augmenter la diffusion vers le système de détection. En pratique, le fond parasite lié au laser est en effet plus important qu'avec l'échantillon A lorsque la zone observée est proche du bord de l'échantillon par lequel est injecté le laser d'excitation. Ces problèmes disparaissent si l'on s'éloigne du bord.

Boîte quantique étudiée : Nous étudierons une boîte appelée B47-9, située dans un fil de 4 µm de largeur.

2.2.2 Pourquoi utiliser une microcavité ?

La microcavité a deux fonctions : d'une part, elle permet le guidage du laser d'excitation jusqu'à la boîte étudiée, d'autre part, elle améliore considérablement l'extraction de la lumière émise par la boîte quantique.

Excitation par la tranche

L'un des rôles de la cavité est de guider le laser d'excitation depuis le bord de l'échantillon jusqu'à la boîte. Le guidage n'a toutefois lieu que dans le plan de la cavité, et le laser d'excitation continue à s'étendre latéralement, comme représenté sur la figure 2.12. Dans la cavité, l'éclairement sur l'axe optique chute plus lentement que dans l'espace libre, en $1/z$ au lieu de $1/z^2$. De plus, l'ouverture θ de la fibre est assez faible (0,12 rad $=$ 7°) et la différence d'indice réduit la divergence à $\theta' = \theta/n_{\mathrm{GaAs}} = 2°$. L'éclairement diminue donc assez lentement lorsque le laser se propage dans l'échantillon.

En considérant un flux F se propageant depuis un point source sur une distance z, avec une divergence θ, l'éclairement sur l'axe optique s'exprime $E_{\mathrm{lib}} = \frac{4F}{\pi(z\sin\theta)^2}$ dans l'espace libre et $E_{\mathrm{cav}} = \frac{4F}{\pi\lambda z\sin\theta}$ dans une cavité d'épaisseur λ. Le rapport $E_{\mathrm{cav}}/E_{\mathrm{lib}} = \frac{z\sin\theta}{\lambda}$ donne une idée du gain entre la situation avec cavité et sans cavité. Ainsi, si l'on place une boîte quantique à une distance typique de 1 mm depuis le bord, l'intensité du laser d'excitation sera 30 fois plus grande avec la cavité que sans.

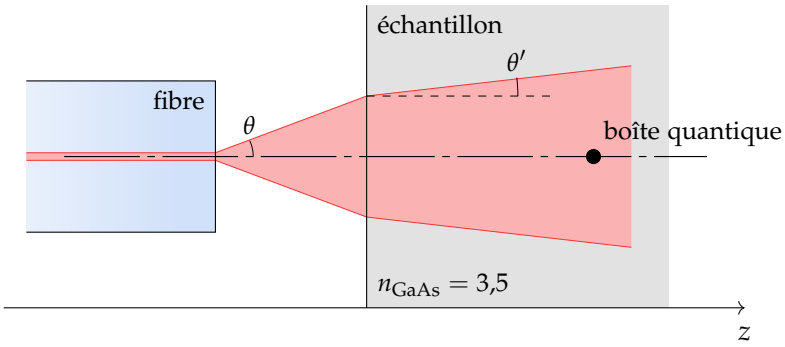


FIGURE 2.12 — Vue de haut de l'échantillon (le plan de la figure est le plan des boîtes).

Différence de transmission des miroirs

Les miroirs de la microcavité planaire ne sont pas équilibrés. En réduisant la réflectivité du miroir supérieur, on favorise l'extraction de la lumière émise par la boîte quantique. Pour l'illustrer, les deux courbes de la figure 2.13 sont les intensités transmises vers le haut (vers l'objectif) et vers le bas (vers le substrat). L'intensité extraite par le haut est ainsi 11 fois plus grande que vers le bas, ce qui signifie que

$\rho_{\text{cav}} = 92\%$ de l'intensité totale est émise par le haut.

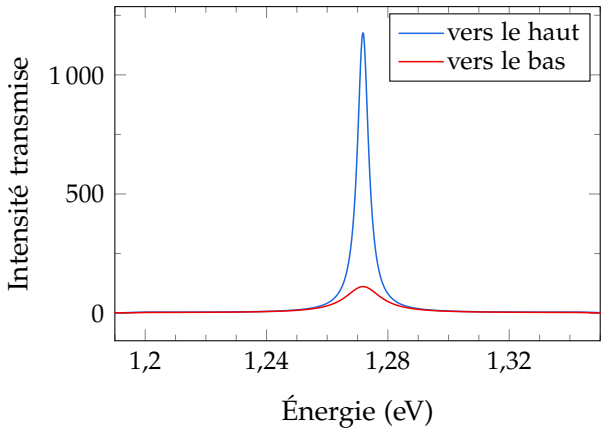


FIGURE 2.13 — Comparaison de l'intensité transmise par la cavité à incidence normale vers le haut (vers l'objectif) et vers le bas (vers le substrat), la source se trouvant à l'intérieur de la cavité, au centre, et émettant des ondes planes d'amplitude 1 vers le haut et vers le bas en incidence normale. Ces courbes sont théoriques et calculées pour l'échantillon A.

Mode émis et collecté par l'objectif de microscope

Les boîtes émettent dans un milieu à indice optique élevé, le GaAs. Typiquement, à une température de 10 K et une longueur d'onde de 1 µm (ou 1,24 eV), l'indice optique du GaAs est 3,45. Que ce soit avec ou sans cavité, seule la lumière émise en-dessous de l'angle de réflexion totale interne se couple à l'extérieur de l'échantillon, le reste étant guidé dans le matériau. Comparons maintenant la transmission avec ou sans cavité*.

Sans cavité, seule la moitié de l'intensité est émise vers le haut ($\rho_{\text{sans cav}} = 50\%$) et affectée d'un coefficient de transmission T dû à la différence d'indice, qui cause plus de 30% de pertes par réflexions entre le GaAs et le vide, et est ensuite répartie sur l'ensemble des 2π sr du demi-espace au-dessus de l'échantillon. Seule l'intensité dirigée vers l'angle solide défini par l'ouverture du système optique sera détectée. Pour une pupille circulaire, cet angle solide sera $2\pi(1 - \cos\alpha)$ sr, où α est l'angle d'ouverture de l'objectif de microscope. Dans notre cas, $ON = \sin\alpha = 0{,}3$, ce qui donne un angle solide de 0,3 sr. L'objectif ne couvre alors que 5% de l'intensité émise.

* On considérera pour ce calcul simple que l'ensemble de l'intensité transmise est répartie de manière isotrope dans les 2π sr. Cela n'est bien sûr pas vrai puisque le coefficient de réflexion augmente avec l'angle d'incidence et que l'émission des boîtes a un profil dipolaire. De même, on ne considère pas les modes en bord d'ouverture, qui ne sont transmis que partiellement. Notre calcul donnera donc une valeur surestimée du gain lié à la présence de la cavité, mais l'idée ici est d'illustrer l'intérêt de la cavité de manière simple.

Avec une cavité, on s'affranchit de la différence d'indice en construisant des interférences à la sortie de la cavité. Comme la cavité a une épaisseur λ, le mode observé est le mode fondamental, et il est le seul à l'énergie d'émission des boîtes. Le signal est ainsi concentré dans un anneau d'interférences unique, dont le rayon angulaire dépend de l'énergie. L'anneau sera donc à l'intérieur ou à l'extérieur de l'ouverture de l'objectif de microscope selon que l'énergie d'émission d'une boîte quantique donnée correspond à un angle θ plus petit ou plus grand que l'angle d'ouverture de l'objectif de microscope. Par rapport à la situation sans cavité, les boîtes ne seront donc pas toutes visibles. En revanche, dans le cas où θ est assez petit pour l'ouverture de l'objectif, une grande partie de l'intensité émise est concentrée dans l'anneau collecté par le système de détection, et elle n'est pas affectée par la différence d'indice.

Pour les boîtes dont l'émission est résonnante avec le mode de cavité, le gain entre la situation avec cavité ou sans cavité est :

$$\frac{I_{\text{avec cavité}}}{I_{\text{sans cavité}}} = \frac{\rho_{\text{cav}}}{T\,\rho_{\text{sans cav}}} \cdot \frac{2\pi}{2\pi(1-\cos\alpha)} = \frac{\rho_{\text{cav}}}{T\,\rho_{\text{sans cav}}} \cdot \frac{1}{1-\cos\alpha} \tag{2.2.9}$$

où T est le coefficient de transmission entre le GaAs et le vide (à l'incidence normale, $T = 69\%$). Cela donne finalement un gain $I_{\text{avec cavité}}/I_{\text{sans cavité}} \approx 60$. Avec un même système de détection, l'intensité de l'émission d'une boîte sera donc environ 60 fois plus grande avec la cavité que sans la cavité, ce qui constitue une amélioration incontestable.

2.3 Mesures de caractérisation

Cette section décrit l'ensemble des techniques de caractérisation des boîtes. Ce sont les premières étapes d'analyse d'une nouvelle boîte qui permettent de connaître ses caractéristiques principales, son énergie, la largeur de raie, la puissance de saturation et d'obtenir une estimation du temps de vie T_1 et du temps de relaxation de la cohérence T_2. Le chapitre 3 traitera plus spécifiquement des mesures interférométriques et de corrélation.

2.3.1 Système d'imagerie de l'échantillon

Une étape préalable à toute mesure de caractérisation d'un échantillon est de visualiser sa surface, où se focalise le laser d'excitation et donc la zone observée par le microscope confocal. Pour cela, l'idéal est d'illuminer l'échantillon à travers l'objectif de microscope avec une source incohérente, comme une lampe blanche, rejetée à l'infini et de conjuguer la surface de l'échantillon avec une caméra CCD. L'échantillon est alors éclairé de manière homogène et l'image obtenue est fidèle à la surface de l'échantillon.

Cependant, pour pouvoir effectuer les mesures de réflectivité décrites au paragraphe suivant, il est nécessaire d'éclairer de manière homogène la pupille de l'objectif de microscope pour couvrir tous les angles incidents sur l'échantillon. De ce fait, nous avons préféré un montage où le filament de la lampe blanche est rejeté à l'infini avant l'objectif de microscope et donc conjugué avec la surface de l'échantillon. Pour ne pas être gênés par l'image du filament sur l'échantillon, on choisit le grandissement du système de manière à obtenir une image du filament beaucoup plus grande que le champ observé par la caméra CCD. Le montage final est schématisé sur la figure 2.14.

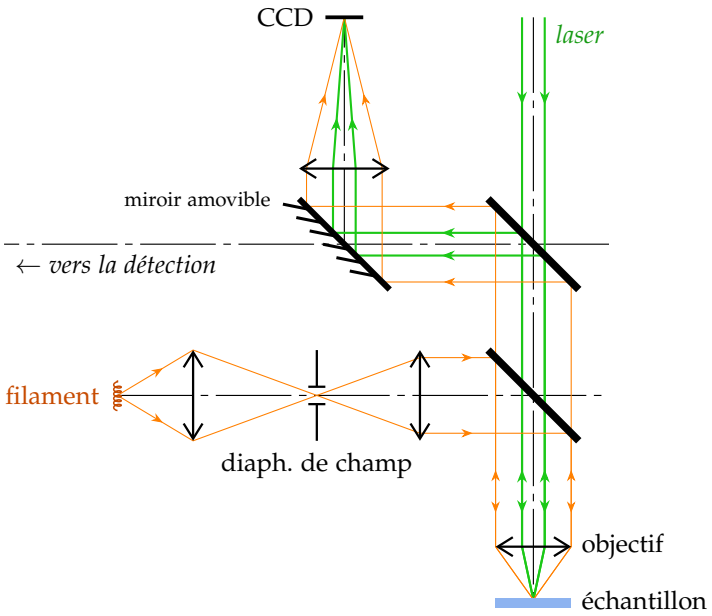


FIGURE 2.14 — Schéma du montage d'illumination et de visualisation de l'échantillon.

2.3.2 Mesure de réflectivité

Lors de la croissance d'un nouvel échantillon, la longueur d'onde à laquelle se situe le mode de cavité peut varier légèrement et être difficile à repérer. Il peut alors être utile de mesurer la réflectivité de la cavité. Le principe est d'éclairer la surface de l'échantillon avec une lampe blanche et d'observer le spectre réfléchi : le mode de cavité apparaîtra comme une raie sombre dans le spectre.

Pour cela, on utilise le montage d'illumination et de visualisation présenté au paragraphe précédent, en retirant le miroir amovible pour envoyer le signal vers le spectromètre en détection. On utilisera le diaphragme de champ de l'illumination pour diminuer au maximum la taille de la source.

Un exemple de mesure en réflectivité est présenté sur la figure 2.15. On peut voir une raie sombre qui correspond au mode de cavité. Le très faible contraste est

très probablement dû au fait que même en fermant au maximum le diaphragme de champ, la tache formée par la source sur la surface de l'échantillon reste de l'ordre de 10 µm. De plus, comme il s'agit d'une mesure sur l'échantillon B, sur des fils photoniques, il y a une part importante de signal qui vient de parties de l'échantillon où il n'y a pas de cavité, en dehors des fils.

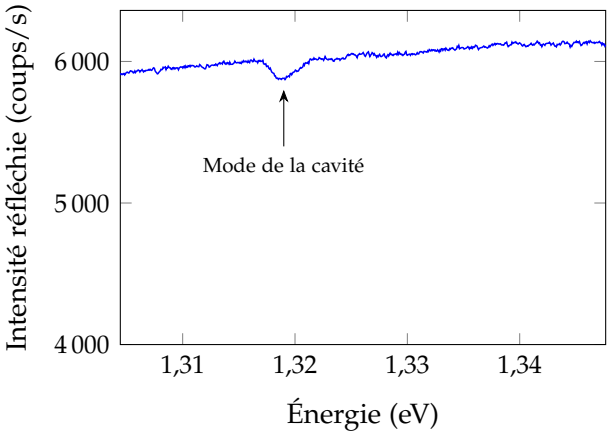


FIGURE 2.15 — Mesure de la réflectivité de l'échantillon B, pour un fil de 6 µm. Le spectre de la lampe halogène utilisée n'est pas parfaitement plat, mais n'empêche pas de voir la raie sombre associée au mode de cavité.

2.3.3 Spectre de photoluminescence

Le principe d'un spectre de photoluminescence est de mesurer l'intensité lumineuse émise par la source en fonction de la longueur d'onde d'émission.

Spectromètre à réseau

Pour mesurer un spectre de photoluminescence, on peut utiliser un spectromètre à réseau tel que celui de la figure 2.16, avec une caméra CCD ou bien en tant que monochromateur, avec une APD placée derrière la fente de sortie. Un miroir escamotable permet de passer de l'une à l'autre.

Nous utilisons deux monochromateurs Jobin-Yvon HR320 équipés chacun d'un réseau de 1200 traits/mm blazé à 750 nm. Il y a un monochromateur pour chacun des deux détecteurs que nous utiliserons. Le Jobin-Yvon HR320 est un monochromateur de type Czerny–Turner*. Il a une focale de 320 mm, comme son nom l'indique, et

* [CZERNY & TURNER 1930] On notera que les monochromateurs Czerny–Turner avec deux miroirs sphériques, tels que le HR320, souffrent de forts défauts d'astigmatisme. On évitera de faire des expériences d'interférométrie à la sortie de l'appareil. Cela explique qu'une expérience à deux détecteurs (pour les interférences à deux photons du chapitre 4) nécessite deux spectromètres à

une ouverture $f/4{,}2$. Le réseau de 1200 traits/mm permet d'atteindre une résolution de l'ordre de 0,1 nm, soit 100 µeV environ à $\lambda = 1$ µm.

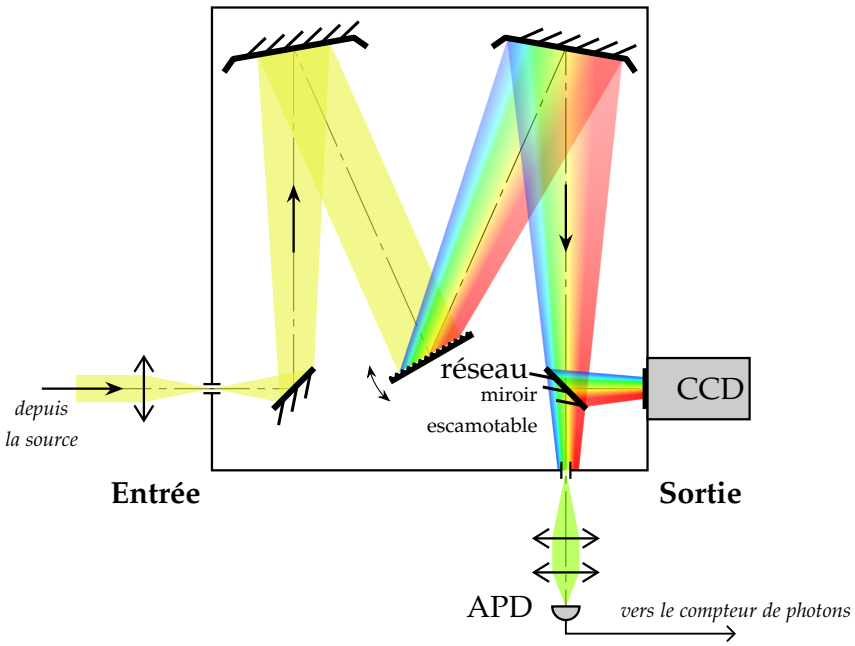


FIGURE 2.16 — Schéma du spectromètre.

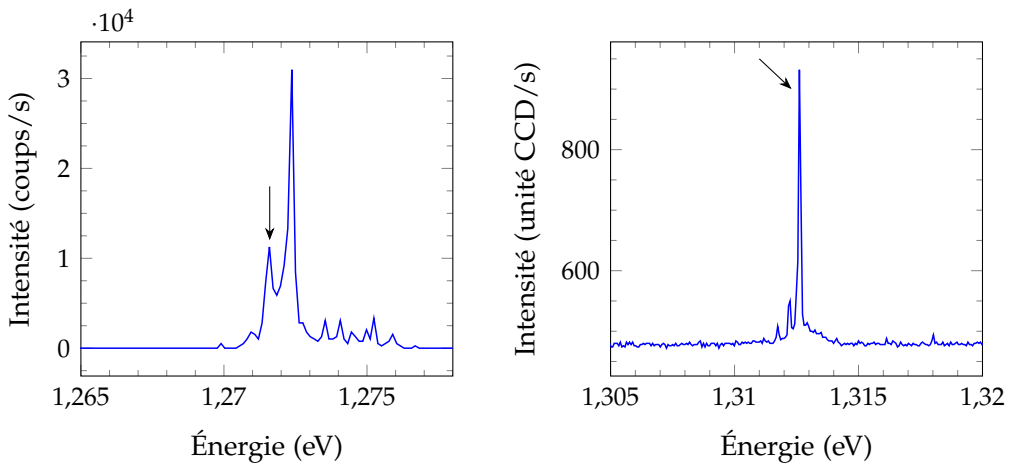
La figure 2.17 présente les spectres de photoluminescence pour chacune des boîtes étudiées ici, mesurés avec l'APD pour la courbe (a) et avec la caméra CCD Andor pour la courbe (b). Les raies désignées d'une flèche sont issues des boîtes étudiées et les autres raies correspondent à d'autres boîtes dans le voisinage.

Interféromètre de Fabry–Pérot

Nous disposons aussi d'un interféromètre de Fabry–Pérot constitué d'une cavité confocale dont la longueur est contrôlée par une cale piézo-électrique. Il permet de mesurer des spectres de photoluminescence en variant la longueur de la cavité pour changer la longueur d'onde transmise. Si cela ne permet pas de connaître la valeur absolue de la longueur d'onde, on peut mesurer le désaccord par rapport à une raie connue, par exemple. L'avantage d'une cavité Fabry–Pérot est d'offrir une résolution bien plus précise qu'avec un spectromètre à réseau classique.

L'appareil que nous utilisons est un Thorlabs SA200-8B, prévu pour être employé entre 820 et 1275 nm. Son intervalle spectral libre est de 1,5 GHz avec une finesse typique de 250 d'après sa documentation. En pratique, suivant la qualité de l'alignement, la finesse est variable autour de 150. La résolution obtenue est alors inférieure à 10 MHz, insuffisante pour résoudre les $\sim$ 100 kHz de largeur de la raie de la diode

chacune des sorties de l'interféromètre, au lieu d'un seul à l'entrée.



(a) Pour QDIII-bis.

(b) Pour B47-9.

FIGURE 2.17 — Spectres de photoluminescence. La raie indiquée par une flèche correspond à l'émission de l'exciton neutre de la boîte étudiée.

laser, mais très correcte pour la raie d'une boîte typiquement de l'ordre du GHz. L'intervalle spectral libre est toutefois assez faible, il faudra donc prendre garde aux risques de recouvrement entre les ordres.

2.3.4 Spectre d'excitation de la photoluminescence

Le spectre d'excitation consiste à maintenir une fenêtre spectrale de détection fixe en variant la longueur d'onde d'excitation. Le spectromètre est d'abord positionné sur la raie d'émission de l'exciton de la boîte quantique étudiée, de manière à transmettre le signal émis vers une APD. On suit ensuite les variations du signal d'émission lorsque l'on modifie la longueur d'onde d'excitation en maintenant la puissance. Lorsque l'émission des photons via la transition observée est la seule voie de relaxation, le spectre d'excitation est proportionnel au spectre d'absorption.

Nous mesurons deux types de spectres d'excitation :

- le spectre d'excitation non-résonnante de la photoluminescence — que nous appellerons spectre de PLE pour *photoluminescence excitation* — consiste à utiliser un laser accordable en énergie sur une grande plage, comme le laser Ti:Sa. Dans ce cas, la longueur d'onde d'excitation n'est jamais dans la fenêtre de détection. Pour ce type de mesure, on pourra exciter par la fibre ou par le microscope confocal, mais dans les deux cas, il est assez difficile de maîtriser la puissance d'excitation* ;

* Dans l'idéal, un spectre d'excitation doit être mesuré en maintenant une puissance d'excitation constante. Du fait de la structure de nos échantillons, il est difficile de maîtriser cette puissance : en excitant par la tranche, l'absorption sur le chemin jusqu'à la boîte observée varie fortement

- le spectre d'excitation résonnante de la photoluminescence (PLE résonnante) consiste à ouvrir les fentes du spectromètre de manière à ne plus utiliser sa fonction de filtrage et intégrer tous les photons émis. La longueur d'onde d'excitation est alors variée, dans une fenêtre de l'ordre de 100 µeV de large typiquement autour de l'énergie de la transition sondée. Pour cette mesure, on utilise l'excitation fibrée du montage d'excitation résonnante.

Des spectres d'excitation non-résonnante de la photoluminescence (PLE non-résonnante) sont présentés sur la figure 2.18 pour la boîte QDIII-bis d'une part (a) et B47-9 d'autre part (a).

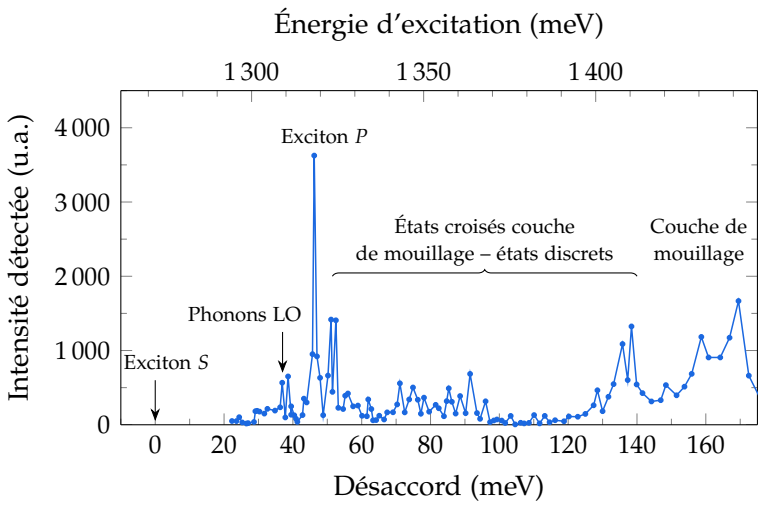
La courbe (a) est une mesure du spectre de PLE non-résonnante de l'exciton *S* de la boîte QDIII-bis. L'échelle des abscisses supérieure donne l'énergie des photons d'excitation et l'échelle inférieure donne le désaccord entre l'énergie d'émission de l'exciton *S* et l'énergie d'excitation. Entre 35 et 40 meV, on trouve l'absorption assistée par l'émission de phonons optiques dans le GaAs. La transition associée à l'exciton *P* correspond à la raie de forte intensité à 47 meV. Entre 50 et 140 meV, diverses raies correspondent en réalité à un continuum d'absorption dû aux transitions entre les états discrets et le continuum d'états associé à la couche de mouillage. De même, à partir de 150 meV, on observe le début de l'absorption par le continuum de la couche de mouillage. L'allure du continuum d'absorption est fortement déformée dans cette mesure du fait de la méthode utilisée : le laser d'excitation est amené par la fibre optique sur la tranche de l'échantillon, puis guidé dans la microcavité jusqu'à la boîte quantique QDIII-bis. Or le continuum d'absorption est lié à la présence de la couche de mouillage, qui s'étend sur toute la surface de l'échantillon : la puissance d'excitation au niveau de la boîte quantique est donc difficile à contrôler*.

La courbe (b) de la figure 2.18 est un spectre de PLE non-résonnante de l'exciton *S* de la boîte B47-9, présentée avec la même échelle d'énergie que pour la courbe (a). Cette mesure comporte beaucoup moins de points et ne permet pas de résoudre les raies fines visibles sur la courbe précédente, mais elle a été effectuée en excitant la boîte par l'objectif de microscope et non par la fibre optique. Cela rend plus évidente et plus fiable l'amplitude de l'absorption par le continuum d'états lié à la couche de mouillage, visible à partir d'un désaccord de 60 meV.

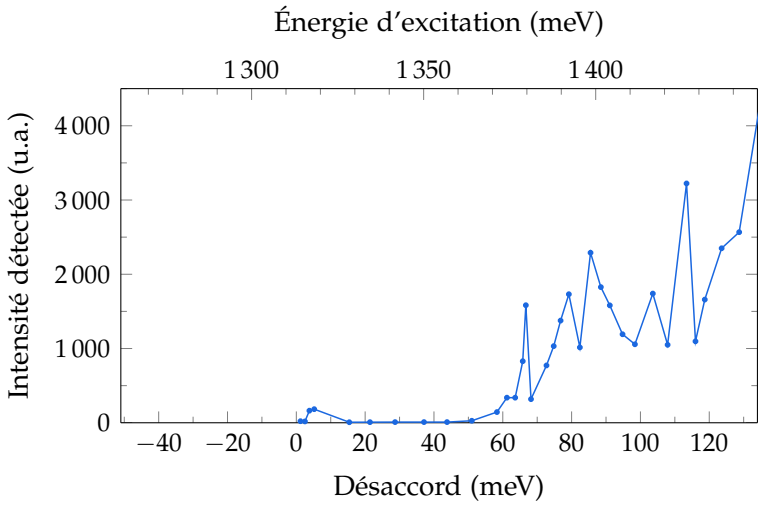
---

avec l'énergie du laser. Il en va de même avec la réflectivité des miroirs de Bragg si l'on excite par le microscope confocal. En pratique, on préférera l'excitation par le confocal car, sur un même échantillon, le problème ne dépend pas de la boîte observée. Les mesures obtenues restent tout de même assez qualitatives.

* Pour chaque point de mesure de spectre de PLE, correspondant à une énergie d'excitation, le spectre de photoluminescence de l'exciton *S* est mesuré avec le spectromètre et la caméra CCD. La raie d'émission de l'exciton *S* est ensuite intégrée pour obtenir un point du spectre de PLE. Pour tenter de corriger les problèmes liés à l'atténuation du laser d'excitation, on divise cette valeur par l'amplitude de la raie du laser diffusé, également visible dans les spectres de photoluminescence. Cette correction ne semble toutefois pas suffire pour rétablir le continuum d'états croisés entre 50



(a) Pour QDIII-bis. La transition de plus basse énergie, celle de l'exciton S, se situe à 1,272 eV.



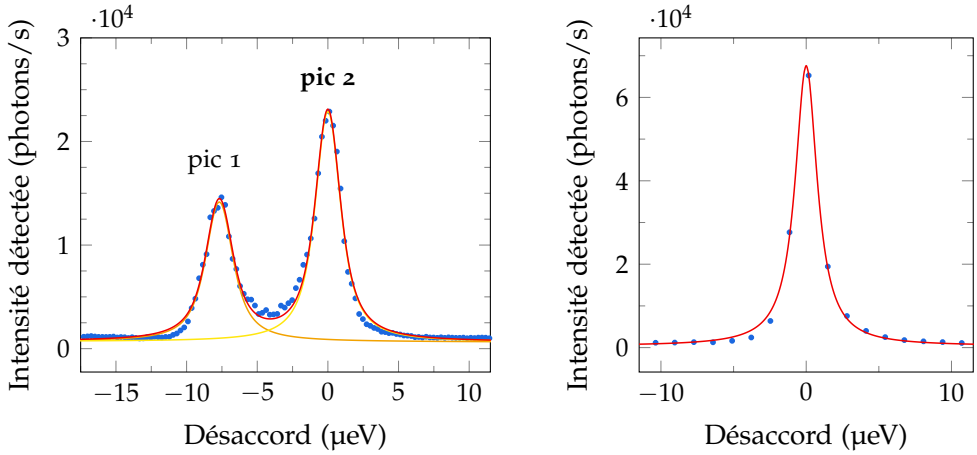
(b) Pour B47-9. La transition de plus basse énergie, celle de l'exciton S, se situe à 1,313 eV.

FIGURE 2.18 — Spectres d'excitation de la photoluminescence (PLE non-résonnante).

La figure 2.19 présente des spectres de PLE résonnante de l'exciton S de QDIII-bis d'une part (a) et de B47-9 d'autre part (b).

Le spectre de B47-9 ne comporte qu'une seule raie de profil lorentzien, alors que le spectre de QDIII-bis a deux raies distinctes (pic 1 et pic 2) liées à la structure fine de l'exciton : une levée de dégénérescence intervient lorsque la boîte n'est pas à symétrie de révolution, du fait de l'interaction d'échange entre le spin de l'électron et du trou [MICHLER 2003, cf. § 5 p. 114–116]. On peut mesurer la polarisation de chacune de ces raies : elles sont rectilignes, orthogonales l'une à l'autre, ce qui est un

et 140 meV.



(a) Pour QDIII-bis. Les deux raies sont liées à la structure fine de l'exciton et sont ajustées avec un profil de Voigt.

(b) Pour B47-9. La raie est ajustée avec un profil lorentzien.

FIGURE 2.19 — Spectres d'excitation de la photoluminescence résonnante de l'exciton pour chacune des boîtes étudiées.

indice très fort qu'il s'agit d'une structure fine et non de l'émission de deux boîtes quantiques voisines, dont les niveaux seraient très proches en énergie. Toutes les mesures à résonance présentées dans cette thèse ont été effectuées en excitant la raie à plus haute énergie (pic 2).

Étude en polarisation de la PLE résonnante

Déterminer la polarisation des raies observées sur le spectre de PLE résonnante permet notamment de différencier deux raies liées à une structure fine de deux raies issues de deux boîtes quantiques proches spectralement et spatialement, par exemple. Cela permet aussi de déterminer si le complexe excitonique observé est neutre ou chargé [NGUYEN 2011, cf. § 1.2.2, p. 26].

Pour mesurer la polarisation des photons émis, on utilise un polariseur précédé d'une lame demi-onde pour tourner l'état de polarisation. Cela est équivalent à tourner directement un polariseur devant le système de détection, sachant que ce polariseur fictif tourne deux fois moins que la lame demi-onde — une rotation de 45° de la lame demi-onde correspond à une rotation de 90° du polariseur. La figure 2.20 est une étude en polarisation des deux raies excitoniques de la boîte QDIII-bis (cf. figure 2.19a). Dans le graphe du haut, l'intensité émise par chacune des raies est suivie en fonction de l'angle θ_{pol} du polariseur fictif équivalent au système « lame demi-onde + polariseur ». L'intensité du fond laser présent sur la mesure de PLE est mesurée en utilisant un désaccord de 20 µeV environ. Le graphe du bas présente l'évolution du rapport entre l'intensité du pic 2 et celle du fond laser, ce

qui permet de déterminer la position idéale où le fond laser est minimal par rapport au signal de photoluminescence. Sur les trois courbes, on retrouve la loi de Malus $I \propto \cos^2 \theta_{\text{pol}}$ caractéristique d'une polarisation rectiligne. Les deux raies du spectre de photoluminescence sont polarisées respectivement à 20° et 110°, et sont donc orthogonales, ce qui est caractéristique des deux raies de la structure fine de l'exciton.

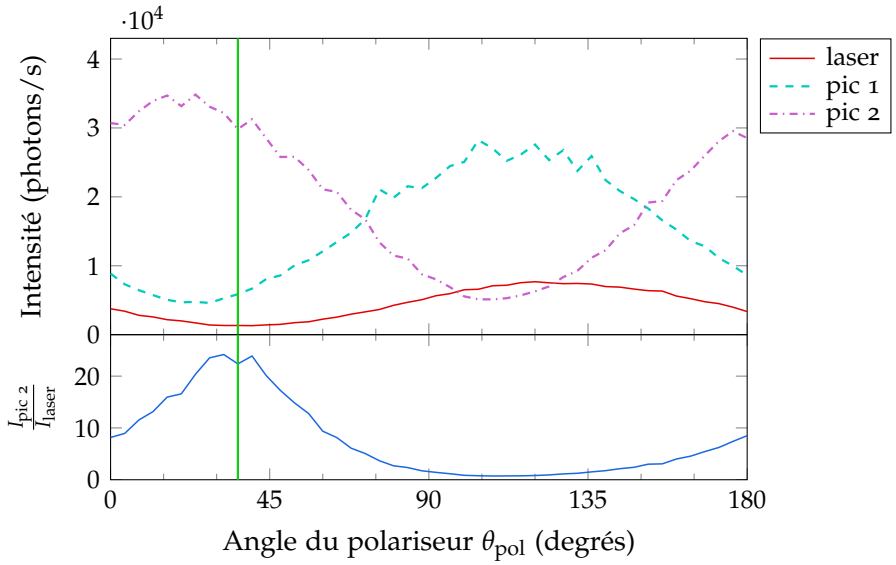


FIGURE 2.20 — Mesures de la polarisation des deux raies du spectre de PLE résonnante pour la boîte QDIII-bis (cf. figure 2.19a). Le graphe inférieur montre l'évolution du rapport entre l'intensité du signal du pic 2 et le fond laser. La ligne verte verticale est la position du polariseur pour laquelle ce rapport est maximal, position à laquelle seront effectuées toutes les autres mesures avec la boîte QDIII-bis.

Étude en puissance d'excitation des spectres de PLE résonnante

Une étude de PLE résonnante en fonction de la puissance d'excitation permet d'obtenir rapidement une estimation de la puissance de saturation p_{sat} du système à deux niveaux et du temps de relaxation de la cohérence T_2 (cf. paragraphe 1.4.5, p. 36). Pour un désaccord Δ donné entre l'énergie du laser et l'énergie de la transition, la puissance de saturation est reliée au paramètre de saturation $s = \frac{p}{p_{\text{sat}}}$ où p est la puissance d'excitation. L'estimation de p_{sat} est de première importance pour différencier les régimes de puissance à étudier, la basse puissance correspondant à $p \ll p_{\text{sat}}$ ($s \ll 1$) et la haute puissance à $p \gg p_{\text{sat}}$ ($s \gg 1$). Travaillant à $\Delta = 0$, nous utiliserons systématiquement le paramètre de saturation à désaccord nul s_0 et nous estimerons la puissance de saturation à désaccord nul, pour laquelle $s_0 = 1$.

D'après les équations (1.4.31) et (1.4.33), I_{max}, l'intensité totale au maximum d'émission du spectre de PLE, et FWHM_f, la largeur à mi-hauteur en fréquence du spectre

de PLE, sont données par :

$$I_{\max} \propto \frac{s_0}{1+s_0} \tag{2.3.1}$$

$$\mathrm{FWHM}_f = \frac{1}{\pi T_2}\sqrt{1+s_0} \tag{2.3.2}$$

En mesurant les spectres de PLE résonnante en fonction de la puissance d'excitation, on extrait le maximum d'intensité émise sur le spectre de PLE et on trace l'évolution de ce maximum en fonction de la puissance d'excitation, comme sur la figure 2.21. En ajustant cette courbe à l'aide de (2.3.1), on peut donc remonter à $p_{\mathrm{sat}} = \frac{p}{s_0}$. Ici, p_{sat} vaut 50,5 u.a. Pour estimer T_2 avec (2.3.2), on utilisera la largeur de raie à très basse puissance : si $s_0 \ll 1$, alors $\mathrm{FWHM}_f = \frac{1}{\pi T_2}$. On mesure à basse puissance une largeur de raie de 3,9 µeV, ce qui amène $T_2 = 0{,}34$ ns. Cette mesure est assez erronée pour la boîte QDIII-bis comme nous le verrons par la suite — nous mesurerons de manière plus fiable $0{,}54 \pm 0{,}10$ ns. Il s'agit d'une première estimation très imprécise, l'écart pouvant être lié à des effets d'interférences entre les deux raies et le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser par un autre émetteur proche spatialement, ou au fait que la puissance n'est pas suffisamment basse devant la saturation.

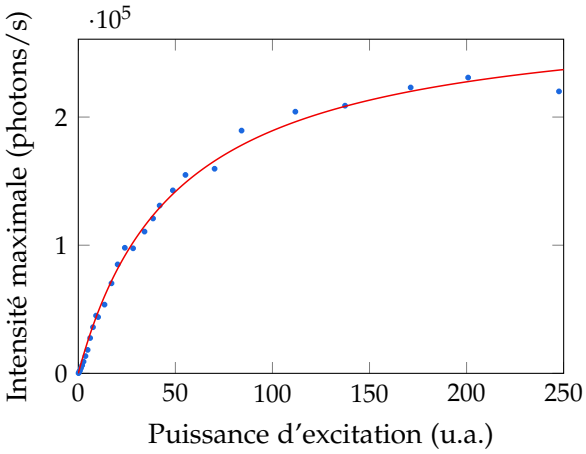


FIGURE 2.21 — Mesure de la courbe de saturation de la boîte quantique QDIII-bis. La puissance de saturation évaluée par l'ajustement est $p_{\mathrm{sat}} = 50{,}5$ u.a..

2.3.5 Mesure de temps de vie

Pour mesurer le temps de vie radiatif d'une transition, le moyen le plus direct est d'utiliser un laser impulsionnel pour préparer le système dans l'état excité, puis de mesurer le temps pour qu'un photon soit émis de manière spontanée. En répétant cette mesure, on peut construire un histogramme qui donnera une

estimation statistique du temps de vie. Ainsi, la résolution temporelle des détecteurs et les impulsions d'excitation doivent être courtes et subir une gigue faible devant le temps de vie.

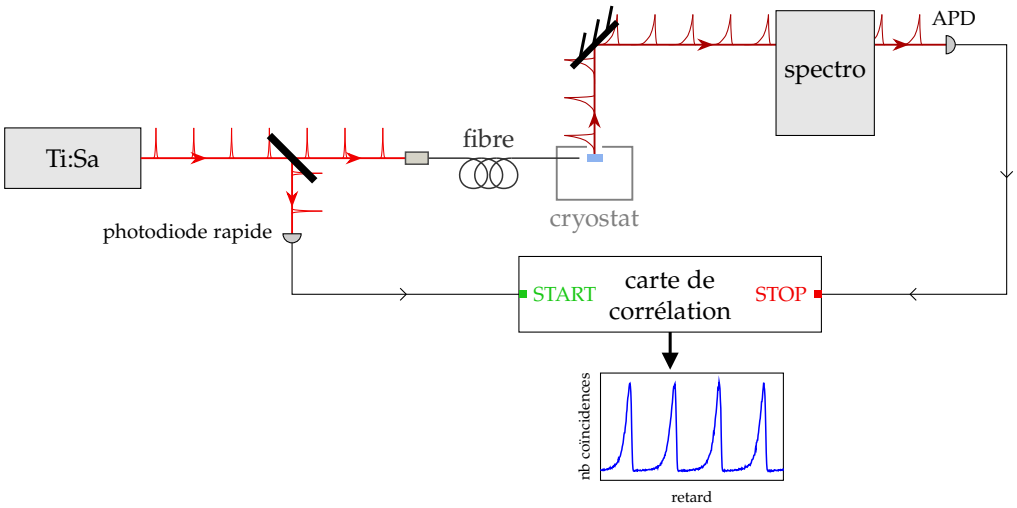
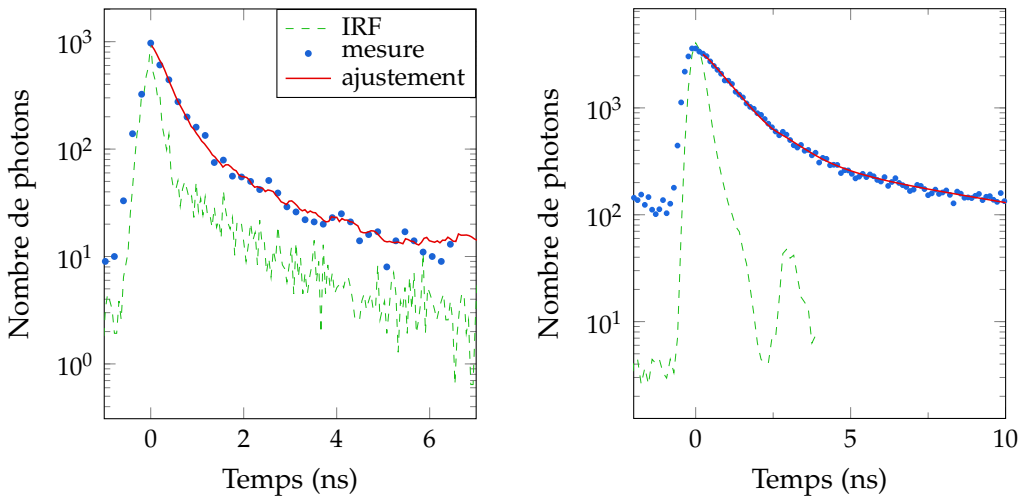


FIGURE 2.22 — Schéma de principe du montage de mesure de temps de vie.

Plus concrètement, si on suit le schéma de la figure 2.22, la mesure du temps de vie utilise la même carte de corrélation que nous utiliserons pour les mesures de corrélation de photons. Son principe de fonctionnement est expliqué au chapitre 3, mais on le résumera comme un chronomètre que l'on déclenche via une voie START et que l'on arrête via une voie STOP. Une photodiode rapide placée au niveau du laser déclenche le chronomètre (START). Cet événement positionne précisément l'instant auquel on excite la boîte. On arrête ensuite le chronomètre (STOP) lorsqu'un photon est détecté par l'APD, ce qui correspond à l'instant d'émission du photon*. Le temps mesuré par le chronomètre entre les événements START et STOP est alors enregistré, et on recommence le processus. En accumulant ainsi ces temps, on peut les répartir sur un histogramme et estimer la loi de probabilité qui les gouverne. Cette loi de probabilité est la décroissance de la population de l'état excité par la voie radiative. Dans un cas idéal, il s'agit d'une exponentielle décroissante dont le temps caractéristique est le temps de vie radiatif, qui est égal à T_1 si la voie radiative est la seule voie de recombinaison.

La figure 2.23 comporte deux mesures de temps de vie, pour chacune des boîtes (a) QDIII-bis et (b) B47-9. Les réponses instrumentales (IRF) sont tracées en vert pointillés. Dans le cas de QDIII-bis, le laser est résonnant avec la transition excitonique

* L'impulsion détectée sur la photodiode rapide n'est pas celle qui excite le système et donne lieu à un photon détecté sur la photodiode à avalanche : ces deux impulsions sont séparées par une durée constante. L'excitation étant périodique, la constante se ramène à une fraction d'une période de 12 ns (cadence de répétition du laser).



(a) Pour QDIII-bis, en excitant à résonance.

(b) Pour B47-9, en excitant dans la couche de mouillage.

FIGURE 2.23 — Mesures de temps de vie.

et le détecteur utilisé est une photodiode à avalanche ID Quantique ID100 possédant un temps de réponse se divisant entre une composante très courte de 40 ps et une très longue de plusieurs nanosecondes, que l'on peut distinguer sur la mesure de l'IRF. L'ajustement théorique utilise une loi mono-exponentielle convoluée avec l'IRF. On estime ainsi un temps de déclin de $0{,}34 \pm 0{,}05$ ns, qui est en excellente correspondance avec la valeur de $T_1 = 0{,}37 \pm 0{,}05$ ns obtenue par la suite dans le chapitre suivant.

Dans le cas de B47-9, l'excitation a lieu à l'énergie de la couche de mouillage* et le détecteur est une photodiode Perkin-Elmer du même type que celles utilisées par ailleurs. L'ajustement utilise une loi bi-exponentielle convoluée avec l'IRF†. On estime ainsi deux temps caractéristiques $0{,}95 \pm 0{,}04$ ns et 9 ± 2 ns. Le temps le plus court pèse plus de 90% de l'amplitude à temps nul et il a une valeur proche de T_1 — nous verrons au chapitre suivant que T_1 est mesuré à $0{,}82 \pm 0{,}03$ ns pour cette même boîte quantique. Le deuxième temps provient vraisemblablement d'autres canaux de relaxation, comme un état d'exciton noir. Le fait que le temps mesuré ici est plus long que l'estimation de T_1 faite par ailleurs est probablement liée à des étapes supplémentaires dans le processus de relaxation lorsque l'on excite à plus haute énergie et non en résonance, comme dans la couche de mouillage.

---

* Du fait de difficultés expérimentales, nous n'avons pas pu effectuer la mesure en excitant à la résonance.

† On peut remarquer un rebond sur l'IRF de la figure 2.23b. Ce rebond est particulièrement visible du fait de l'échelle logarithmique mais est d'amplitude négligeable et provient vraisemblablement d'une réflexion optique dans le chemin de détection.

Conclusion du chapitre

Si l'utilisation d'un microscope confocal permet en général de détecter la photoluminescence d'une boîte quantique unique, il n'est pas suffisant pour l'observation de la photoluminescence résonnante car on ne peut alors pas séparer spectralement le laser d'excitation du signal de photoluminescence. La solution à ce problème passe par deux modifications du montage de microphotoluminescence : d'une part, le faisceau du laser d'excitation est envoyé directement dans le cryostat à travers une fibre optique, et arrive au niveau de l'échantillon orthogonal à l'axe du système de détection ; d'autre part, l'échantillon de boîtes quantiques est structuré pour inclure le plan de boîtes au centre d'une microcavité planaire dont l'intérêt est de guider le laser d'excitation et de rediriger une grande partie de la photoluminescence vers l'ouverture du système de détection.

Le montage de microphotoluminescence acquiert ainsi une grande souplesse d'utilisation, puisque l'on peut caractériser des boîtes quantiques InAs/GaAs ou n'importe quels objets émettant avec une longueur d'onde proche de 950 nm, dans de très nombreuses configurations d'excitation et de détection, à condition de disposer d'un échantillon en microcavité planaire si l'on cherche à les exciter à la résonance. Ces expériences de caractérisation ne permettent cependant que d'identifier de possibles émetteurs, leur énergie d'émission, leur diagramme d'énergie, les largeurs de raie, la dépendance en puissance d'excitation, et une estimation parfois assez grossière des temps caractéristiques T_1 et T_2. Il reste à déterminer s'il s'agit d'émetteurs de photons uniques, un trait décisif pour identifier une boîte quantique unique, ainsi qu'une estimation précise de leurs temps caractéristiques T_1 et T_2 qui sera l'un des objectifs du chapitre 3.

3 Autocorrélation en champ et en intensité

Les interférences et la notion de cohérence en optique sont profondément reliées aux fonctions de corrélation du champ électrique. Ces fonctions sont d'une importance primordiale lorsqu'il s'agit de mesurer des interférences à deux photons, ce que nous considérerons au chapitre 4. Ici, nous définissons les fonctions d'autocorrélation du champ et plus spécifiquement celles du second et du quatrième ordre, qui sont appelées respectivement $g^{(1)}(\tau)$, autocorrélation du champ, et $g^{(2)}(\tau)$, autocorrélation de l'intensité. Si $g^{(1)}(\tau)$ est directement reliée au profil spectral de la source étudiée, $g^{(2)}(\tau)$ permet, elle, de mesurer la statistique d'un faisceau de photons. En particulier, dans le cas d'une source de photons uniques, l'autocorrélation de l'intensité présente un creux caractéristique du dégroupement des photons.

Différents montages expérimentaux sont utilisés pour mesurer ces deux fonctions d'autocorrélation et nous les employons afin de comprendre le comportement de l'émetteur en fonction de la puissance d'excitation et d'ainsi caractériser de manière rigoureuse et robuste le temps de vie T_1 et le temps de relaxation de la cohérence T_2 des boîtes QDIII-bis et B47-9. Nous constatons également que $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ sont affectées par la présence d'un fond parasite dû au laser d'excitation, dont l'effet est le sujet principal du chapitre 5. Enfin, à très basse puissance d'excitation, nous mesurons le dégroupement des photons de photoluminescence malgré le fait qu'ils sont essentiellement émis par diffusion élastique du laser d'excitation. Une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ derrière un filtre ne conservant que les photons émis dans la largeur de raie du laser conduit cependant à une perte du dégroupement, qui se trouve donc être le fruit d'interférences entre les diffusions élastique et inélastique des photons d'excitation.

3.1 Fonctions de corrélation du champ 76
3.2 Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$ 78
3.3 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$ 89
3.4 Effets d'un filtrage spectral sur le dégroupement des photons 101
Conclusion du chapitre 109

3.1 Fonctions de corrélation du champ

3.1.1 Définitions

Nous allons utiliser régulièrement les fonctions de corrélation du champ électrique telles qu'elles ont été définies par Roy J. Glauber*.

Tout d'abord, on se place au niveau d'un détecteur, au point $\vec{r}$, à l'instant t. On considère un champ électrique polarisé rectilignement, ce qui permet de l'écrire comme un champ scalaire $E(\vec{r},t)$, et, comme précédemment, on le décompose suivant ses composantes de fréquences positives et négatives :

$$E(\vec{r},t) = E^{(+)}(\vec{r},t) + E^{(-)}(\vec{r},t) \tag{3.1.1}$$

avec

$$E^{(+)}(\vec{r},t) = \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_{\vec{k}} a_{\vec{k}}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\nu_{\vec{k}}t+\mathrm{i}\vec{k}\cdot\vec{r}} \tag{3.1.2}$$

$$E^{(-)}(\vec{r},t) = \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_{\vec{k}} a^{\dagger}_{\vec{k}}\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\nu_{\vec{k}}t-\mathrm{i}\vec{k}\cdot\vec{r}} \tag{3.1.3}$$

où pour chaque mode de vecteur d'onde $\vec{k}$, $\nu_{\vec{k}}$ est la fréquence du champ, $\mathcal{E}_{\vec{k}}$ l'amplitude, et $a_{\vec{k}}$ et $a^{\dagger}_{\vec{k}}$ les opérateurs annihilation et création.

À partir de ces champs, on peut définir de façon générale la fonction de corrélation d'ordre n :

$$G^{(n)}(\vec{r}_1,\ldots,\vec{r}_{2n};t_1,\ldots,t_{2n}) = \left\langle E^{(-)}(\vec{r}_1,t_1)\ldots E^{(-)}(\vec{r}_{2n},t_{2n})\, E^{(+)}(\vec{r}_1,t_1)\ldots E^{(+)}(\vec{r}_{2n},t_{(2n)})\right\rangle \tag{3.1.4}$$

et sa version normalisée, aussi appelée *degré de cohérence d'ordre n* :

$$g^{(n)}(\vec{r}_1,\ldots,\vec{r}_{2n};t_1,\ldots,t_{2n}) = \frac{G^{(n)}(\vec{r}_1,\ldots,\vec{r}_{2n};t_1,\ldots,t_{2n})}{\prod_{j=1}^{2n}\sqrt{G^{(1)}(\vec{r}_j,\vec{r}_j;t_j,t_j)}} \tag{3.1.5}$$

En réalité, nous n'utiliserons que les fonctions du premier et du deuxième ordre, qui s'écrivent, dans l'hypothèse d'un champ stationnaire :

$$G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t+\tau)\right\rangle \tag{3.1.6}$$

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \tag{3.1.7}$$

* [Glauber 1963]. Les définitions des fonctions de corrélation sont reprises dans tous les ouvrages de référence d'optique quantique. On pourra les retrouver par exemple dans [Scully & Zubairy 1997, cf. § 4.2, p. 111].

Si le champ est stationnaire, cela signifie que l'on peut réduire la dépendance temporelle à un simple écart τ entre les temps*. Ne considérer qu'une seule source permet de s'affranchir des dépendances spatiales dans les expressions précédentes.

Les versions normalisées s'écrivent alors :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{G^{(1)}(\tau)}{G^{(1)}(0)} \tag{3.1.8}$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{\left[G^{(1)}(0)\right]^2} \tag{3.1.9}$$

où on notera que $G^{(1)}(0) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t) \right\rangle$ est proportionnel à l'intensité du signal détecté.

Pour calculer ces fonctions de corrélation, l'idée la plus commune est de se ramener au dipôle émetteur en utilisant les considérations exposées au paragraphe 1.4.4 (p. 35) et en particulier la relation (1.4.27) qui établit que $E^{(\pm)}(t) \propto S_{\mp}(t)$. Ainsi, on aura par exemple $G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle = \left\langle S_+(t)\, S_-(t+\tau) \right\rangle$

3.1.2 Passage entre le référentiel du laboratoire et le référentiel tournant du laser

Les fonctions de corrélation seront souvent exprimées dans le référentiel tournant du laser d'excitation, où l'on peut utiliser les équations de Bloch. Les grandeurs exprimées dans le référentiel tournant seront alors surmontées d'un tilde ~ (par exemple $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$).

Lorsque l'on remplace $E^{(\pm)}(t)$ (référentiel du laboratoire) par $\tilde{E}^{(\pm)}(t)$, il faut prendre en compte la phase accumulée depuis l'origine des temps t_0 jusqu'à l'instant t. Ainsi :

$$E^{(\pm)}(t) = \tilde{E}^{(\pm)}(t)\ \mathrm{e}^{\mp \mathrm{i}\phi_{t_0 \to t}} \tag{3.1.10}$$

où $\phi_{t_0 \to t}$ est la phase accumulée de t_0 à t. De même, on aura :

$$S_{\pm}(t) = \tilde{S}_{\pm}(t)\ \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}\phi_{t_0 \to t}} \tag{3.1.11}$$

Pour écrire ces expressions, les fluctuations du laser doivent être lentes devant les fluctuations dues à la relaxation naturelle dans la boîte, c'est-à-dire que le temps de cohérence du laser $T_{\mathrm{L}} \gg T_1, T_2$.

---

* Dans le cas de $G^{(1)}$, il n'y a que deux temps t_1 et t_2 en jeu, et dans ce cas $\tau = t_2 - t_1$. Le cas de $G^{(2)}$ est plus délicat étant donné que quatre temps sont en jeu. En réalité, cette définition est choisie pour correspondre aux mesures que nous ferons par la suite, pour lesquelles on a $t_1 = t_4$ et $t_2 = t_3$. L'écart τ s'exprime donc à nouveau $\tau = t_2 - t_1$.

3.2 Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$

Intéressons-nous tout d'abord à la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ pour le champ émis par une boîte quantique excitée à résonance. Nous la mesurons à l'aide d'un interféromètre de Michelson, le principe de cette mesure étant expliqué ensuite, avant de finir par les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour QDIII-bis et B47-9.

3.2.1 $g^{(1)}(\tau)$ pour l'émission de la boîte seule

Le calcul résumé ici est détaillé dans [Nguyen 2011, cf. § A.1.3, p. 177]. Il reprend la méthode exposée dans [Scully & Zubairy 1997, cf. p. 296–307], tout en incluant les deux types de relaxation en T_1 et en T_2.

Le principe principal est de changer de base propre du système à deux niveaux : on passe de $(|g\rangle, |e\rangle)$ à $(|-\rangle, |+\rangle)$, telle que :

$$|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|e\rangle \pm |g\rangle) \tag{3.2.1}$$

En effectuant le changement de variables dans les équations d'évolution (1.4.21a) et (1.4.21b) (p. 19) du chapitre 1, on découple les termes de population des termes de cohérence. Cela permet de résoudre les équations analytiquement, et en particulier d'obtenir la relation entre $\langle S_-(t+\tau)\rangle$ en fonction des valeurs moyennes des opérateurs à t. On peut ainsi appliquer le théorème de régression quantique pour obtenir l'expression du corrélateur $\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle$, et donc finalement de $g^{(1)}(\tau)$.

Passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire

En utilisant la relation (3.1.11), le passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire fait apparaître un facteur de phase accumulée par le laser entre t et $t+\tau$ ($\tau > 0$) :

$$\left\langle S_+(t)\, S_-(t+\tau)\right\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\phi_{t\to t+\tau}} \cdot \left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle \tag{3.2.2}$$

La phase $\phi_{t\to t+\tau}$ accumulée entre t et $t+\tau$ est constituée d'une part oscillant à ω_L et d'une part aléatoire, telles que :

$$\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\phi_{t\to t+\tau}} = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau} \cdot \langle \mathrm{e}^{\mathrm{i}\theta}\rangle \tag{3.2.3}$$

où θ est une phase qui suit une marche aléatoire dont le taux de diffusion est $\Gamma_\mathrm{L} = 1/T_\mathrm{L}$. De cette façon, on obtient :

$$\langle \mathrm{e}^{\mathrm{i}\theta}\rangle = \sum P(\theta)\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\theta}\, \mathrm{d}\theta = \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_\mathrm{L}}} \tag{3.2.4}$$

où $P(\theta)$ est la densité de probabilité d'un bruit blanc gaussien sur θ.

Pour plus de précisions sur l'intégration de cette phase aléatoire, on pourra se référer à [*ibid.*, cf. § 11.4.1, p. 342–345].

Au final, le passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire s'écrira :

$$\left\langle S_+(t)\, S_-(t+\tau)\right\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau}\cdot \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_\mathrm{L}}}\cdot\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle \tag{3.2.5}$$

Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$

Dans [Nguyen 2011, cf. expression A.53, p. 182], Hai-Son Nguyen établit l'expression suivante pour $\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle$, dans le référentiel tournant du laser* :

$$\begin{aligned}&\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle = \\ &\frac{\Omega^2 T_1 T_2}{2(1+\Omega^2 T_1 T_2)}\cdot\left[\frac{\frac{T_2}{2T_1}}{1+\Omega^2 T_1 T_2}+\frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_2}}+\frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-\eta\tau}\cdot\left[\tilde{\alpha}\cos(\nu\tau)+\tilde{\beta}\sin(\nu\tau)\right]\right]\end{aligned} \tag{3.2.6}$$

avec

$$\begin{aligned}\eta &= \frac{1}{2}\left[\frac{1}{T_1}+\frac{1}{T_2}\right] & \nu &= \sqrt{\Omega^2-\frac{1}{4}\left[\frac{1}{T_1}-\frac{1}{T_2}\right]^2}\\ \tilde{\alpha} &= 1-\frac{T_2}{T_1(1+\Omega^2 T_1 T_2)} & \tilde{\beta} &= \frac{\Omega^2 T_1(3T_2-T_1)-\frac{(T_1-T_2)^2}{T_1 T_2}}{2\nu T_1(1+\Omega^2 T_1 T_2)}\end{aligned} \tag{3.2.7}$$

En observant le préfacteur, on reconnaît l'expression (1.4.31) (p. 36) de l'intensité totale émise en régime stationnaire $\langle I\rangle^{(\mathrm{st})}$, à désaccord nul ($\Delta = 0$), et plus précisément de la population de l'état excité $\rho_{bb}^{(\mathrm{st})} = \langle S_+(t)S_-(t)\rangle$. Pour passer maintenant au $g^{(1)}(\tau)$ dans le référentiel du laboratoire, il faut donc écrire :

$$g^{(1)}(\tau) = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau}\cdot\mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_\mathrm{L}}}\,\frac{\tilde{G}^{(1)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)} \tag{3.2.8}$$

$$= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau}\cdot\mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_\mathrm{L}}}\,\frac{\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle}{\langle S_+(t)\, S_-(t)\rangle} \tag{3.2.9}$$

$$= \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau}\cdot\mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_\mathrm{L}}}\cdot\left[\frac{\frac{T_2}{2T_1}}{1+\Omega^2 T_1 T_2}+\frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_2}}+\frac{1}{2}\,\mathrm{e}^{-\eta\tau}\cdot\left[\tilde{\alpha}\cos(\nu\tau)+\tilde{\beta}\sin(\nu\tau)\right]\right] \tag{3.2.10}$$

---

* Notez que l'expression [Nguyen 2011, cf. expression A.53, p. 182] est en réalité $\langle S_+(t)S_-(t+\tau)\rangle$ et non $g^{(1)}(\tau)$ et que le préfacteur $\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_0 t}$ doit être remplacé par $\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega_\mathrm{L}\tau}$, qui représente la phase accumulée par le laser entre t et $t+\tau$, en négligeant les fluctuations. En retirant ce préfacteur, on obtient donc l'expression dans le référentiel tournant $\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau)\rangle$. De plus, l'ordre des temps dans le corrélateur est inversé dans la référence par rapport au formalisme que nous utilisons ici, ce qui change le signe de la phase. Cela n'a toutefois aucune importance pour les mesures, puisque nous ne mesurons que le module $|g^{(1)}(\tau)|$, comme nous le verrons au paragraphe 3.2.3.

On remarquera que $g^{(1)}(\tau)$ est sensible à T_1 et T_2 de manière séparée. Autrement dit, on ne peut pas les échanger, ce qui ne sera pas le cas pour $g^{(2)}(\tau)$ comme nous le verrons au paragraphe 3.3.3 (p. 91). Nous pouvons donc utiliser les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour estimer T_1 et T_2. La plus précise des deux valeurs sera ensuite fixée dans les ajustements sur le $g^{(2)}(\tau)$.

3.2.2 $g^{(1)}(\tau)$ en ajoutant un champ laser diffusé

L'expression (3.2.10) de $g^{(1)}(\tau)$ ne peut pas s'ajuster seule sur une mesure réelle. Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.3.4 (p. 69), les mesures de spectres de PLE résonnante et leur étude en polarisation mettent en lumière la présence d'un fond parasite lié à la diffusion du laser d'excitation, par un ou plusieurs diffuseurs présents dans le volume observé par le système de détection. Or en excitant à la résonance, le laser d'excitation est cohérent avec le signal de photoluminescence et donc susceptible d'interférer avec lui. Pour modéliser $g^{(1)}(\tau)$ tel qu'il est mesuré, il ne suffit donc pas d'ajouter $g^{(1)}(\tau)$ pour le champ du laser et pour le champ de photoluminescence d'une boîte quantique, il faut prendre en compte les interférences entre les deux.

Nous ajoutons à présent l'hypothèse d'un diffuseur parfaitement élastique situé quelque part dans le mode observé, et susceptible de diffuser un champ électrique d'amplitude proportionnelle au champ d'excitation du laser. Ainsi on remplace l'opérateur S_- par la somme $S_- + \alpha$ et S_+ par $S_+ + \alpha^*$. $S_\pm$ représente la contribution du dipôle de la boîte quantique, identique à précédemment, tandis que α est la contribution du champ diffusé par un diffuseur élastique externe, parfaitement proportionnel au champ du laser. Dans le référentiel tournant du laser, il s'agit donc d'une constante complexe $\tilde{\alpha}$. Le corrélateur $\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau) \right\rangle$ est alors remplacé par :

$$\tilde{G}^{(1)}(\tau) \propto \left\langle (\tilde{S}_+(t) + \tilde{\alpha}^*)\, (\tilde{S}_-(t+\tau) + \tilde{\alpha}) \right\rangle \tag{3.2.11}$$

$$= \left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau) \right\rangle + |\tilde{\alpha}|^2 + \left[\left\langle \tilde{S}_+(t) \right\rangle \tilde{\alpha} + \left\langle \tilde{S}_-(t) \right\rangle \tilde{\alpha}^* \right] \tag{3.2.12}$$

On rappelle que $\left\langle \tilde{S}_+(t)\, \tilde{S}_-(t+\tau) \right\rangle$ est donné par l'expression (3.2.6) et que $\langle \tilde{S}_+(t) \rangle$ est égal à $\tilde{\rho}_{ge}^{(\mathrm{st})}$ donné par l'expression (1.4.23) (p. 35). L'expression ci-dessus est donc établie. Pour obtenir $g^{(1)}(\tau)$, il reste à normaliser par la valeur à $\tau \to +\infty$.

3.2.3 Interféromètre de Michelson

La manière la plus simple de mesurer $g^{(1)}(\tau)$ est d'enregistrer un interférogramme à l'aide, par exemple, d'un interféromètre de Michelson représenté sur la figure 3.1.

La différence de marche δ entre les deux bras de l'interféromètre correspond à un retard τ :

$$\tau = \frac{c}{\delta} \tag{3.2.13}$$

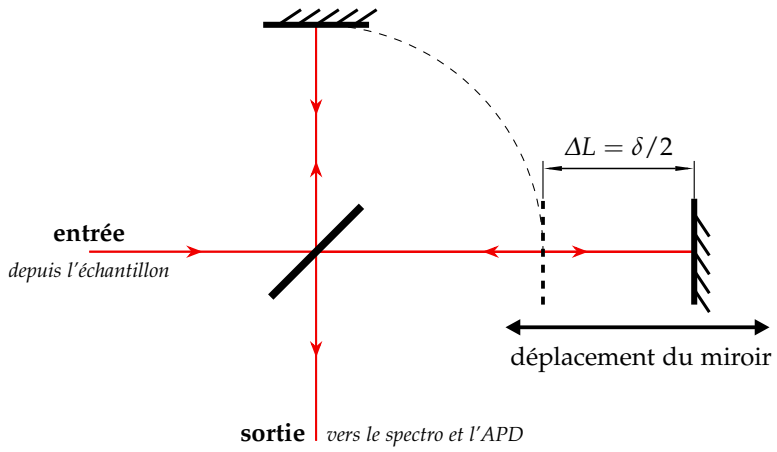


FIGURE 3.1 — Schéma d'un interféromètre de Michelson. La différence de marche δ est la différence de longueur optique entre les deux bras, la lumière décrivant un aller-retour dans $\Delta L = \delta/2$.

Le champ émis par la source étant supposé stationnaire, on peut écrire le champ électrique en sortie de l'interféromètre [Fox 2006, cf. § 2.3, p. 16] :

$$E_{\text{out}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[E(t) + E(t+\tau) \right] \tag{3.2.14}$$

L'intensité observée par le détecteur est finalement la moyenne temporelle du module carré du champ, sur le temps t_{D} d'intégration du détecteur. En se rappelant les expressions (3.1.6) et (3.1.8), et en considérant le temps t_{D} très long devant le temps caractéristique des fluctuations du système à deux niveaux, on retrouvera :

$$\overline{I} \propto \overline{|E_{\text{out}}(t)|^2} \tag{3.2.15}$$

$$= I_0 \left[1 + \text{Re} \left[g^{(1)}(\tau) \right] \right] \tag{3.2.16}$$

où la notation $\overline{I}$ représente la moyenne sur le temps d'intégration t_{D}. Si les processus gouvernant les fluctuations du système à deux niveaux sont stationnaires et ergodiques, cette moyenne est égale à la moyenne d'ensemble $\langle I \rangle$.

Or le contraste des franges C à un certain retard τ dans l'interféromètre τ est défini comme :

$$C(\tau) = \frac{I_{\text{max}}(\tau) - I_{\text{min}}(\tau)}{I_{\text{max}}(\tau) + I_{\text{min}}(\tau)} \tag{3.2.17}$$

où $I_{\text{max}}(\tau)$ et $I_{\text{min}}(\tau)$ sont respectivement les intensités des franges brillantes et sombres au retard τ.

Cela implique finalement que la mesure du contraste est une mesure du module de la fonction $g^{(1)}(\tau)$:

$$\langle I \rangle = I_0 \left[1 + \left| g^{(1)}(\tau) \right| \cos(\omega_0 t) \right] \tag{3.2.18}$$

où ω_0 est la pulsation centrale du champ E.

3.2.4 Théorème de Wiener-Khintchine

L'un des intérêts de la mesure de la fonction $g^{(1)}$ est qu'elle permet d'accéder au spectre de la source observée en utilisant le théorème de Wiener-Khintchine [Mandel & Wolf 1995, cf. § 2.4.1, p. 56–60].

Tout d'abord on considère l'amplitude du champ électrique comme une fonction aléatoire $E(t)$ gouvernée par un processus stationnaire tel que l'intégrale suivante existe :

$$\hat{E}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t}\, \mathrm{d}t \tag{3.2.19}$$

On définit alors le spectre $I(\omega)$ de $E(t)$:

$$I(\omega) = \left\langle |\hat{E}(\omega)|^2 \right\rangle \tag{3.2.20}$$

Le théorème de Wiener-Khintchine établit que le spectre $I(\omega)$ de $E(t)$ est égal à la transformée de Fourier de $G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle$, soit :

$$I(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G^{(1)}(\tau)\, \mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega\tau}\, \mathrm{d}\tau \tag{3.2.21}$$

Cette formule peut parfois être prise comme définition de la densité spectrale de puissance. On a également :

$$G^{(1)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega)\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega\tau}\, \mathrm{d}\tau \tag{3.2.22}$$

On peut aussi utiliser la fonction d'autocorrélation normalisée. De manière plus pratique, nous utiliserons les relations qui suivent :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \mathrm{TF}\left[I(\omega)\right] \tag{3.2.23a}$$

$$I(\omega) \propto \mathrm{TF}^{-1}\left[g^{(1)}(\tau)\right] \tag{3.2.23b}$$

où TF et TF^{-1} désignent respectivement la transformée de Fourier et la transformée de Fourier inverse.

3.2.5 Techniques de mesure

En pratique, notre interféromètre n'est pas strictement un interféromètre de Michelson, mais un interféromètre de Mach-Zehnder replié, représenté sur la figure 3.2 : il utilise des coins de cube en lieu et place des simples miroirs plans d'un interféromètre de Michelson. Les coins de cube assurent le parallélisme entre les modes sortants des deux bras sans qu'il soit nécessaire de régler leur angle. Pour optimiser le recouvrement de ces modes, on n'optimise que la position latérale des coins de cube. Cette configuration donne aussi accès aux deux modes sortants de

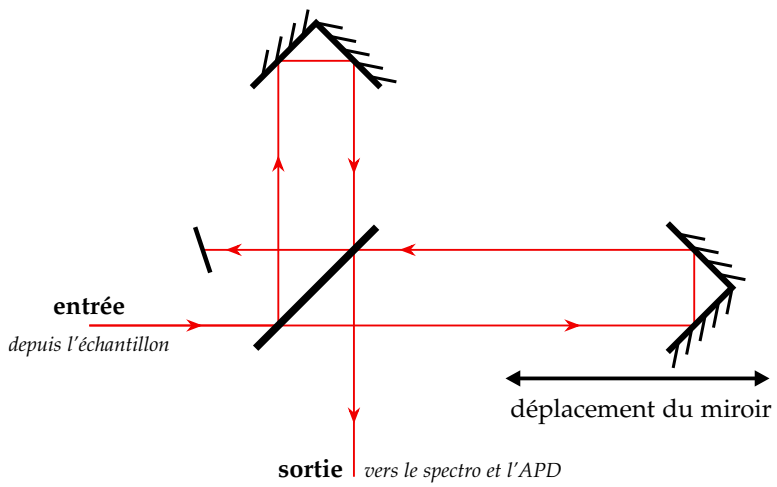


FIGURE 3.2 — Schéma de l'interféromètre de Mach-Zehnder replié, utilisé dans notre montage.

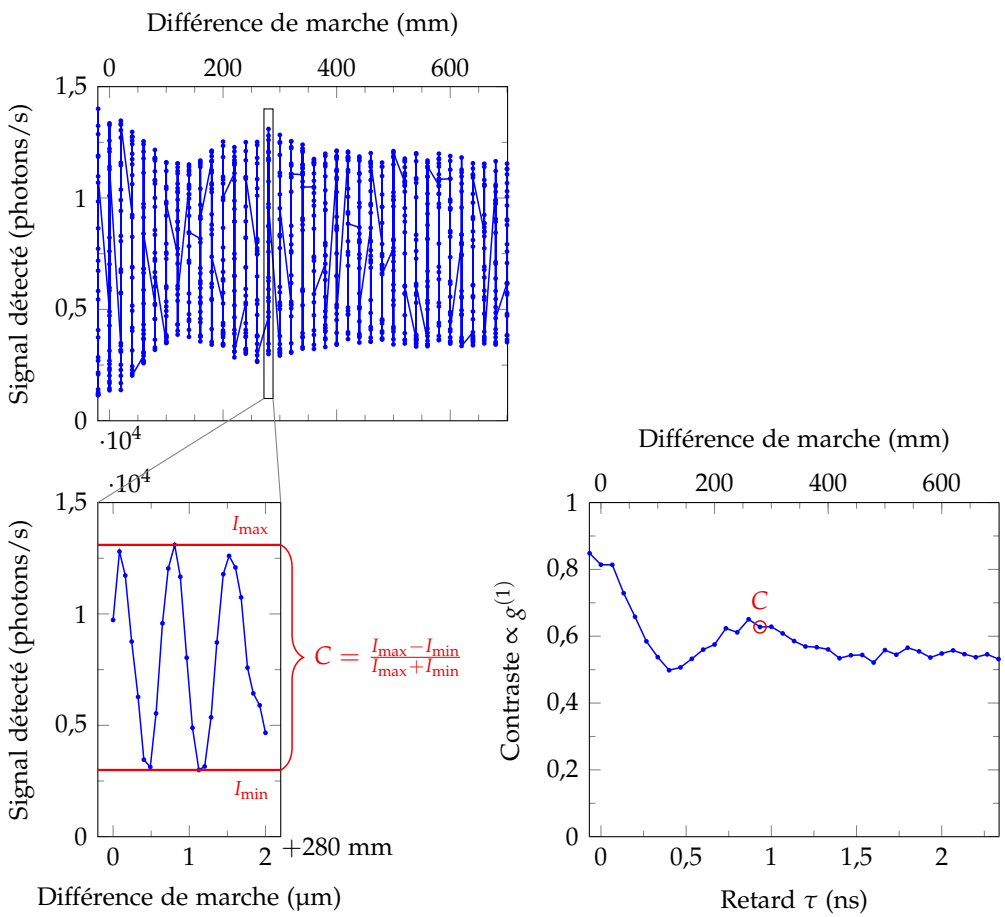


FIGURE 3.3 — Principe de la mesure du contraste effectuée avec l'interféromètre de Michelson.

l'interféromètre, alors que dans un interféromètre de Michelson, l'un des modes est réfléchi vers l'entrée. Ce montage est donc assez souple d'utilisation et peut être converti en interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss ou de Hong–Ou–Mandel (qui seront décrits par la suite).

La ligne à retard utilisée comporte deux niveaux de déplacement. Tout d'abord, un niveau constitué par une platine de translation Newport M-IMS400PP. Sa course de 400 mm permet de faire des mesures de contraste jusqu'à des retards de 2,5 ns environ*. La précision de son positionnement est de l'ordre du micromètre, ce qui est insuffisant pour échantillonner correctement les franges†. Ensuite, un niveau de positionnement fin, constitué d'une platine de translation équipée d'un actuateur Newport NanoPZ PZA12, qui a une course de 12,5 mm et un pas minimal de l'ordre de 30 nm. Ce sera donc grâce à lui que l'on pourra échantillonner correctement les franges.

La procédure d'enregistrement de l'interférogramme est expliquée sur la figure 3.3. Pour chaque point $C(\tau)$ de la mesure de contraste, le retard τ est ajusté avec le déplacement grossier, puis on utilise le déplacement fin pour mesurer les franges autour du retard τ. On détermine ainsi $I_{\max}(\tau)$ et $I_{\min}(\tau)$, ce qui permet d'établir $C(\tau) = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$.

L'enregistrement d'un interférogramme prend de quinze à trente minutes suivant le nombre de points voulus.

3.2.6 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$

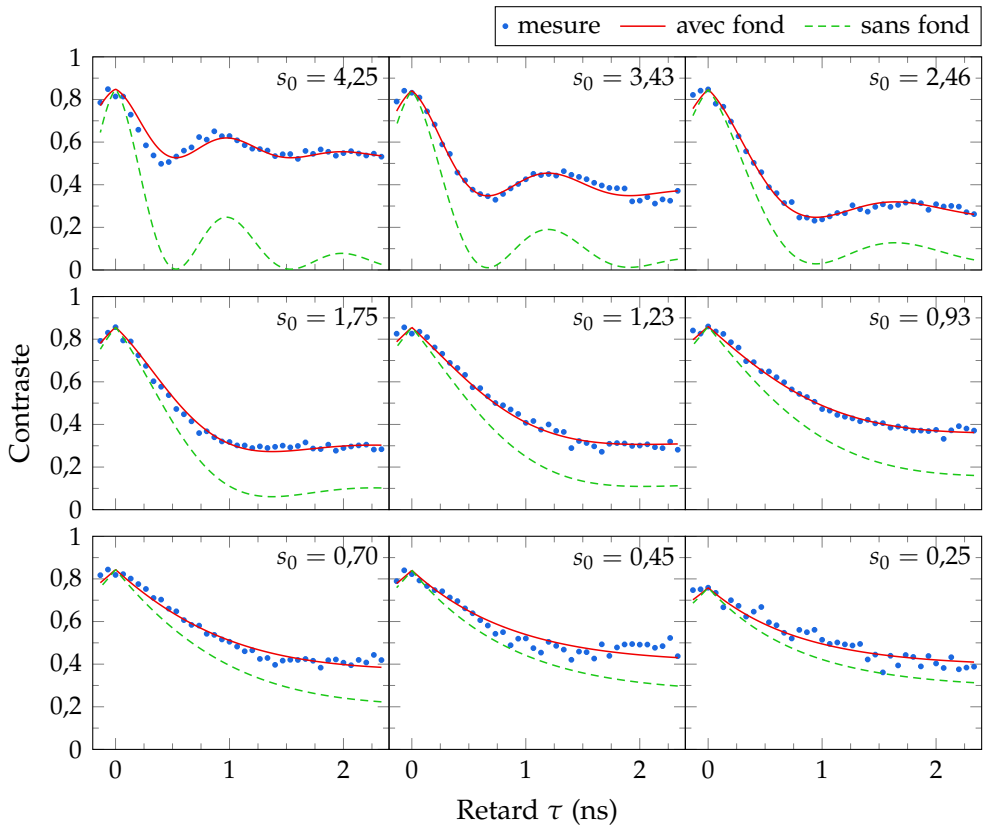
Nous effectuons en général les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation, puisqu'il s'agit du seul paramètre pouvant ici être modifié indépendamment des autres. Sur la figure 3.4, on peut voir un ensemble de mesures de $g^{(1)}(\tau)$ effectué en changeant la puissance d'excitation, pour les boîtes B47-9 (courbes (a)) et QDIII-bis (courbes (b)).

Les ajustements théoriques présentés (courbes rouges) ne sont pas possibles sans la prise en compte d'un fond parasite lié au laser. Nous utilisons donc l'expression (3.2.12) (p. 80) pour ajuster les données expérimentales. La courbe en pointillés verts correspond au modèle théorique sans le fond parasite lié au laser, mais avec tous les autres paramètres identiques, ce qui permet de se rendre compte du rôle important du fond parasite dans la mesure. À haute puissance, on voit apparaître les oscillations

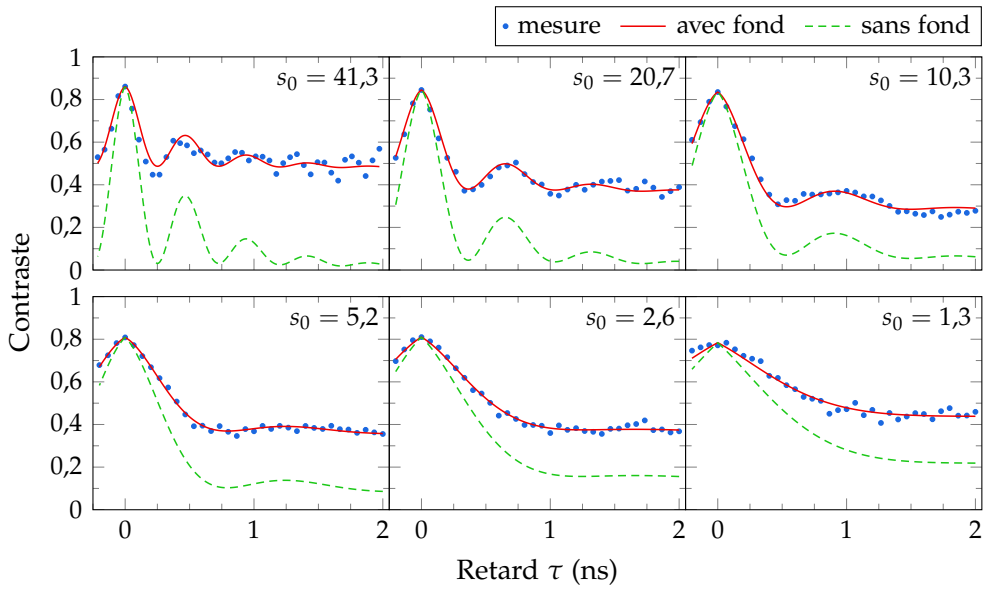
---

* Ce retard maximal correspond à une résolution spectrale limitée à 400 MHz soit 1,7 µeV.

† Pour faire une mesure de contraste, seuls le minimum et le maximum de la figure d'interférences nous intéressent. Il n'est donc pas forcément nécessaire d'échantillonner les franges : un sous-échantillonnage est possible, mais nécessite d'acquérir de nombreux points afin d'avoir une estimation certaine du maximum et du minimum. En pratique, cela rend l'acquisition d'un interférogramme deux à trois fois plus longue et celui-ci peut être affecté de battements entre la fréquence des franges et la fréquence d'échantillonnage.



(a) Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour la boîte B47-9.



(b) Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis.

FIGURE 3.4 — Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. Les points bleus correspondent à la courbe expérimentale, la courbe rouge à un ajustement théorique. La courbe verte pointillée correspond à la courbe théorique en enlevant le fond parasite cohérent, les paramètres étant égaux par ailleurs.

de Rabi, conséquence de l'excitation résonnante. On peut vérifier que leur période correspond bien à $2\pi/\Omega$ où Ω est la pulsation de Rabi, telle que $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. À basse puissance, la période des oscillations augmente, jusqu'à disparaître lorsqu'elles deviennent lentes devant l'amortissement lié à T_1 et T_2.

Il est intéressant d'observer la naissance d'une composante très longue lorsque la puissance diminue. Cela est surtout visible sur les courbes bleues pointillées, où le fond parasite du laser a été retiré : à haute puissance, la courbe tend vers un contraste nul, tandis qu'à basse puissance, elle semble se rallonger au point de tendre vers une valeur non nulle. Cette composante de très longue cohérence, apparaissant à basse puissance, est due à la diffusion élastique des photons du laser par le système à deux niveaux. Sur les mesures brutes, le fait que le contraste tende vers une valeur non nulle a donc une origine différente suivant la puissance d'excitation : à haute puissance, cela est dû au fait que la part de laser parasite est grande par rapport à l'émission du système à deux niveaux qui sature ; à basse puissance, la diffusion élastique par le système à deux niveaux devient prépondérante.

Les temps T_1 et T_2 sont tirés d'un ajustement théorique à partir de l'expression (3.2.12). Dans la procédure d'ajustement, l'amplitude du laser $\tilde{\alpha}$ est laissée libre pour chaque courbe, mais T_1 et T_2 sont des paramètres joints, dont la valeur est optimisée sur l'ensemble des mesures. On peut donc obtenir une estimation que l'on confrontera aux estimations établies à partir d'autres mesures*. Les temps estimés par cette procédure d'ajustement sont les suivants :

	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0{,}43 \pm 0{,}12$ ns	$0{,}9 \pm 0{,}2$ ns
T_2	$0{,}54 \pm 0{,}10$ ns	$0{,}75 \pm 0{,}05$ ns

où les incertitudes indiquées sont deux fois l'erreur-type estimée par la procédure d'ajustement.

Fond parasite

La procédure d'ajustement optimise la valeur de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ où $\tilde{\alpha}$ est en unités arbitraires. Si le paramètre $\tilde{\alpha}$ évolue proportionnellement à la racine carrée de l'intensité d'excitation, $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ est donc constant.

Pour évaluer une valeur de $\tilde{\alpha}$ ayant du sens, nous cherchons à la ramener à l'intensité de photoluminescence de la boîte quantique. À basse puissance, loin de la saturation, l'intensité de photoluminescence est proportionnelle à s_0 : d'après l'expression (1.4.31) (p. 36), on a $I_{\mathrm{BQ,BP}} = \frac{s_0}{2}$.

* Pour le T_1, une mesure directe du temps de vie sous excitation résonnante est normalement possible, ce qui devrait l'établir sans équivoque. Toutefois, à cause de problèmes expérimentaux liés à la stabilité de notre laser impulsionnel Ti:Sa, nous n'arrivons pas toujours à obtenir la mesure du T_1 à la résonance. C'est malheureusement le cas pour B47-9, par exemple.

Pour ramener la valeur de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ au champ de photoluminescence, il faut donc multiplier la valeur brute obtenue par le modèle par $\sqrt{2}$. Toutes les valeurs de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ données par la suite seront ainsi relatives à l'amplitude du champ de photoluminescence à basse puissance.

Dans le cas présent, pour les mesures de la figure 3.4, l'ajustement a été effectué en laissant $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ libre pour chaque point de mesure. Sa valeur fluctue, mais on évalue en moyenne :

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = 0{,}4 \pm 0{,}2 \text{ pour QDIII-bis,} \tag{3.2.24}$$

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = 0{,}4 \pm 0{,}2 \text{ pour B47-9.} \tag{3.2.25}$$

Ces deux valeurs sont identiques, ce qui est vraisemblablement une coïncidence puisque le fond est assez variable d'un émetteur à l'autre et même d'une mesure à l'autre comme nous le verrons au chapitre 5.

Une valeur de 0,4 signifie qu'à basse puissance (lorsque l'intensité de photoluminescence est proportionnelle à s_0), l'amplitude du champ parasite vaut 40% de l'amplitude du champ de photoluminescence. Cela peut paraître très important mais n'est pas nécessairement significatif car les valeurs établies ici le sont sans considérer la partie imaginaire de $\tilde{\alpha}$ et le modèle a des limites que nous étudierons plus en détails dans le chapitre 5.

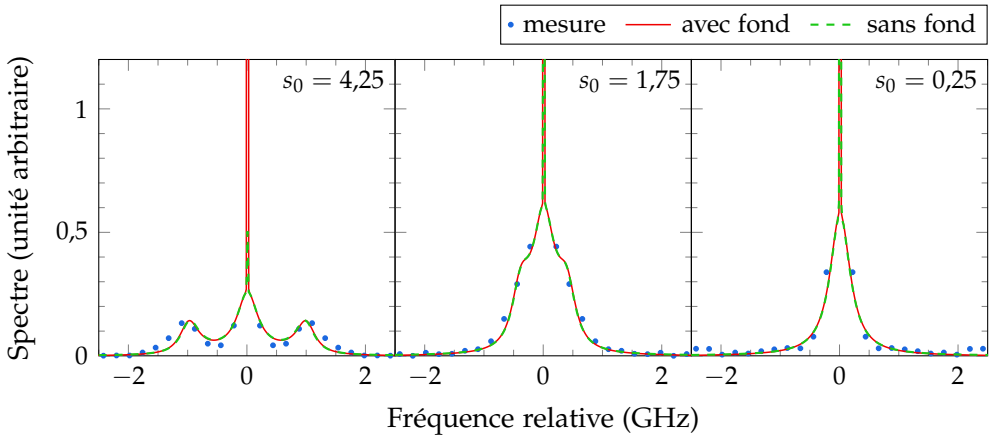
Spectres

En utilisant le théorème de Wiener-Khintchine (cf. paragraphe 3.2.4, p. 82), on peut calculer le spectre de photoluminescence à l'aide d'une transformée de Fourier* de $g^{(1)}(\tau)$. Le résultat est présenté sur la figure 3.5, pour plusieurs puissances d'excitation et pour chacune des boîtes étudiées. Notez que sur ces figures le haut de la courbe — la composante fine — est tronqué afin de pouvoir observer les composantes larges d'amplitude plus faible. Les points bleus sont les points expérimentaux, la courbe rouge continue représente l'ajustement de la courbe expérimentale et la courbe verte pointillée est le calcul théorique correspondant sans le fond parasite mais avec tous les autres paramètres identiques.

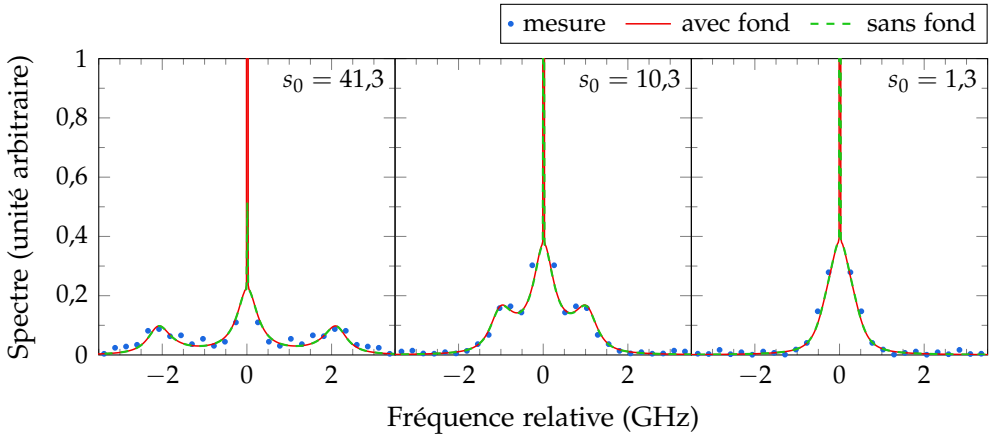
À haute puissance, le spectre est constitué d'un triplet appelé triplet de Mollow [Mollow 1969] et correspond à l'équivalent spectral des oscillations de Rabi, qui agissent comme une modulation à la pulsation de Rabi Ω de l'amplitude du champ émis par le système à deux niveaux. Le triplet tend toutefois à disparaître au sein de la composante centrale avec la diminution de la puissance d'excitation, ce qui

* Il s'agit d'une transformée de Fourier discrète, opérée sur la mesure après symétrisation de la courbe en prenant le symétrique de la courbe par rapport à $\tau = 0$. Aucun autre traitement n'a été effectué, et le manque de résolution sur le spectre provient du fait que la ligne à retard de l'interféromètre ne permet pas d'aller au-delà de 2,5 ns environ.

correspond à l'allongement de la période des oscillations constaté au paragraphe précédent, et plus précisément lorsque cette période devient longue devant les temps d'amortissement caractéristiques T_1 et T_2. De plus, comme nous l'avons vu précédemment, la composante centrale très fine correspond à une composante très longue dans le $g^{(1)}(\tau)$ due à la diffusion du laser. Que ce soit la diffusion parasite à haute puissance ou la diffusion élastique sur le système à deux niveaux à basse puissance, ces deux processus aboutissent au même profil spectral. En observant les courbes vertes pointillées qui ne prennent pas en compte le fond parasite, on peut observer la diminution de la composante élastique à haute puissance.



(a) Spectres de photoluminescence pour la boîte B47-9.



(b) Spectres de photoluminescence pour la boîte QDIII-bis.

FIGURE 3.5 — Spectres de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation, calculés à partir des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ de la figure 3.4.

3.3 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$

3.3.1 Lumière dégroupée

Pour rappel, la fonction d'autocorrélation du champ du second ordre $g^{(2)}(\tau)$, s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t) \right\rangle}{\left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t) \right\rangle^2} \tag{3.3.1}$$

ce que l'on peut réécrire comme l'autocorrélation de l'intensité :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I(t) I(t+\tau) : \rangle}{I^2} \tag{3.3.2}$$

où la notation $: \square :$ réordonne les opérateurs suivant l'ordre normal, c'est-à-dire suivant l'expression (3.3.1). Cet ordre est lié au processus de photodétection à deux photons (cf. paragraphe 3.3.5, p. 94).

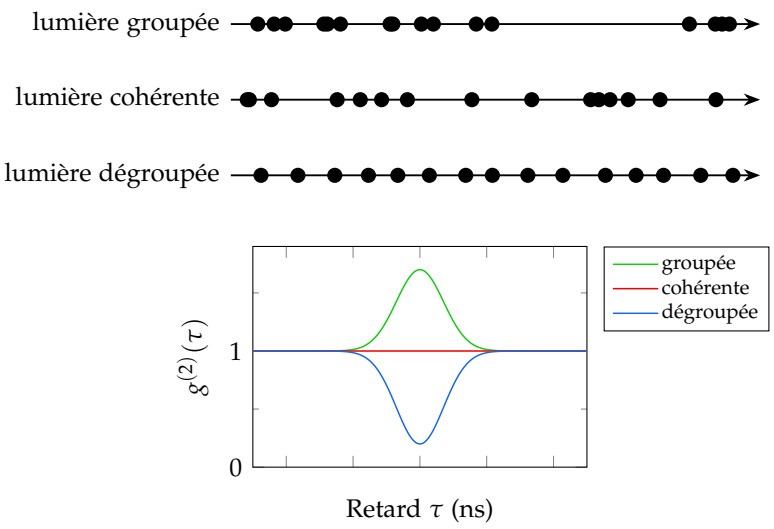


FIGURE 3.6 — Exemples de distribution des photons pour de la lumière groupée, cohérente et dégroupée, et fonctions d'autocorrélation associées.

En fonction du comportement de cette fonction d'autocorrélation, on peut définir trois catégories statistiques (cf. figure 3.6) [FOX 2006, cf. § 6.5, p. 115–117 ; MANDEL & WOLF 1995, cf. § 14.7, p. 712] :

- *la lumière groupée*, pour laquelle les photons auront tendance à être plus proches qu'éloignés les uns des autres, ce qui signifie que $g(\tau) < g(0)$;
- *la lumière cohérente**, où les photons se répartissent aléatoirement, sans considé-

* Nous définissons ici la lumière cohérente au deuxième ordre uniquement. On parle également de cohérence pour le premier ordre, c'est-à-dire lorsque $g^{(1)}(\tau) = 1$, et de cohérence au sens large, c'est-à-dire que $g^{(n)}(\tau) = 1$ pour tout n.

ration de proximité avec leurs voisins, ce qui signifie que $g(\tau) = g(0)$;
- *la lumière dégroupée,* pour laquelle les photons auront tendance à être plus éloignés que proches les uns des autres, ce qui signifie que $g(\tau) > g(0)$.

La lumière groupée ou la lumière cohérente peuvent être décrites avec une onde électromagnétique classique, ce n'est pas le cas de la lumière dégroupée qui nécessite le concept du photon, qui ne pourra jamais être absorbé par deux détecteurs différents. De plus, si elles sont intimement liées, nous distinguerons ici ces trois catégories des statistiques poissonnienne, sub-poissonnienne ou sur-poissonnienne, qui ne décrivent pas exactement les mêmes comportements [Zou & Mandel 1990].

En particulier, pour un mode unique du champ on a $E^{(+)}(t) \propto a\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t}$ où a est l'opérateur annihilation et ω la pulsation. Si l'on s'intéresse à la valeur de $g^{(2)}(0)$, celle-ci s'écrit :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle a^\dagger a^\dagger a\, a\rangle}{\langle a^\dagger a\rangle^2} \tag{3.3.3}$$

En utilisant le commutateur $[a, a^\dagger] = 1$ et l'opérateur nombre $n = a^\dagger a$, on a :

$$\begin{aligned}\langle a^\dagger a^\dagger a\, a\rangle &= \langle a^\dagger (a\, a^\dagger - 1)\, a\rangle \\ &= \langle n(n-1)\rangle\end{aligned} \tag{3.3.4}$$

et de même :

$$\langle a^\dagger a\rangle^2 = \langle n\rangle^2 \tag{3.3.5}$$

Ainsi, pour un mode unique du champ, on a :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n(n-1)\rangle}{\langle n\rangle^2} \tag{3.3.6}$$

Si l'on considère maintenant un état nombre $|n\rangle$, la valeur à $\tau = 0$ de $g^{(2)}(\tau)$ vaut :

$$g^{(2)}(0) = \frac{n(n-1)}{n^2} = 1 - \frac{1}{n} \tag{3.3.7}$$

Si n vaut 1, $g^{(2)}(0) = 0$; si n vaut 2, $g^{(2)}(0) = \frac{1}{2}$. On en déduit que si $g^{(2)}(0) < \frac{1}{2}$, l'état du champ autour de $\tau = 0$ est au moins partiellement un état nombre $|1\rangle$, ce qui est la signature d'une source de photons uniques.

3.3.2 Passage dans le référentiel tournant du laser

Nous utiliserons également l'autocorrélation non-normalisée $G^{(2)}(\tau)$ qui s'écrit :

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \tag{3.3.8}$$

On passe du référentiel du laboratoire au référentiel tournant du laser avec la relation (3.1.10). Il vient alors :

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle \mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{t_0\to t}}\, \tilde{E}^{(-)}(t)\; \mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{t_0\to t+\tau}}\, \tilde{E}^{(-)}(t+\tau)\; \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\phi_{t_0\to t+\tau}}\, \tilde{E}^{(+)}(t+\tau)\; \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\phi_{t_0\to t}}\, \tilde{E}^{(+)}(t)\right\rangle \tag{3.3.9}$$

soit finalement :

$$G^{(2)}(\tau) = \tilde{G}^{(2)}(\tau) \tag{3.3.10}$$

Ainsi le passage dans le référentiel tournant du laser n'affecte pas $G^{(2)}(\tau)$.

3.3.3 $g^{(2)}(\tau)$ de l'émission de la boîte seule

Pour le calcul de la fonction de corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$, nous allons suivre à nouveau le calcul de la thèse de Hai-Son Nguyen* [Nguyen 2011, cf. § A.3, p. 185–186]. Le principe utilisé cette fois est de déterminer la probabilité d'émettre un photon à $t+\tau$ sachant qu'un photon a été précédemment émis à t. Plus concrètement il s'agit de déterminer la population de l'état excité à $t+\tau$ sachant que la population est totalement dans l'état fondamental à t :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\rho_{ee}(\tau)|_{\rho_{gg}(0)=1}}{\rho_{ee}^{(\mathrm{st})}} \tag{3.3.11}$$

En effectuant le même changement de base que pour le calcul de $g^{(1)}(\tau)$, on peut alors établir :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-\eta\tau} \cdot \left[\cos(\nu\tau) + \frac{\eta}{\nu}\sin(\nu\tau)\right] \tag{3.3.12}$$

où l'on rappelle que :

$$\eta = \frac{1}{2}\left[\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2}\right]$$
$$\nu = \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4}\left[\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right]^2}$$

Il est important de noter que T_1 et T_2 jouent des rôles parfaitement symétriques en ce qui concerne $g^{(2)}(\tau)$. Un ajustement à l'aide de cette formule devra donc être fait en connaissant au moins l'un des deux temps, que l'on pourra extraire d'une mesure directe du temps de vie ou d'une mesure de $g^{(1)}(\tau)$.

En partant de (3.3.12), on peut retrouver les expressions établies dans la littérature [Scully & Zubairy 1997, cf. équation (10.6.4), p. 308 ; Carmichael & Walls 1976, cf. équation (12)] pour un système à deux niveaux à la limite radiative, où $\frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} = \Gamma$:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-\frac{3}{4}\Gamma\tau}\left[\cos(\nu\tau) + \frac{3\Gamma}{4\nu}\sin(\nu\tau)\right] \tag{3.3.13}$$

De plus, à basse puissance, $g^{(2)}(\tau)$ ne dépend plus de la puissance d'excitation proportionnelle à Ω^2. En effet, pour $\Omega \ll \Gamma$, ν se réduit à $\frac{\mathrm{i}}{2}\left|\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right| = \mathrm{i}\frac{\Gamma}{4}$. L'expression précédente se réduit alors à :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \mathrm{e}^{-\Gamma\tau} - 2\,\mathrm{e}^{-\Gamma\tau/2} \tag{3.3.14}$$

* Ce calcul est inspiré de [Paul 1982, cf. § VI.A], voir en particulier p. 1093 où le lien entre $g^{(2)}(\tau)$ et les probabilités conditionnelles est expliqué et utilise le théorème de régression quantique.

Une manière alternative de calculer le $g^{(2)}(\tau)$ à basse puissance sera introduite au paragraphe 3.4.1 et permettra de commenter les trois termes de cette expression. On remarquera que même à basse puissance, $g^{(2)}(\tau)$ ne se réduit pas à une simple exponentielle décroissante, son comportement étant différent du cas d'un pompage non-résonnant, par exemple, pour lequel on aurait [Michler 2003, cf. § 4 du dernier chapitre, p. 323–326] :

$$g^{(2)}_{\mathrm{NR}}(\tau) = 1 - \mathrm{e}^{-\tau/t_{\mathrm{d}}} \tag{3.3.15}$$

où $t_{\mathrm{d}} = 1/(\Gamma + W_{\mathrm{p}})$ combine le taux d'émission spontanée Γ et le taux de pompage W_{p}.

L'allure théorique de $g^{(2)}(\tau)$ pour un système à deux niveaux à la limite radiative a été tracée sur la figure 3.7, en utilisant les expressions (3.3.13) et (3.3.14). Le creux de dégroupement des photons lié au caractère de source de photons uniques d'un système à deux niveaux est clairement visible, avec $g^{(2)}(0) = 0$. À très basse puissance, la largeur du creux est d'environ $5T_1$ et ne dépend pas de la puissance. Lorsque la puissance augmente, les oscillations de Rabi apparaissent et, de ce fait, le creux de dégroupement s'affine. Il faudra garder à l'esprit que, lorsqu'elle sont mesurées, ces courbes sont convoluées par la réponse instrumentale du système de détection, ce qui diminuera fortement l'amplitude des oscillations. De plus, les systèmes étudiés ne sont pas à la limite radiative, ce qui a tendance à retarder l'apparition des oscillations lorsque l'on augmente la puissance d'excitation.

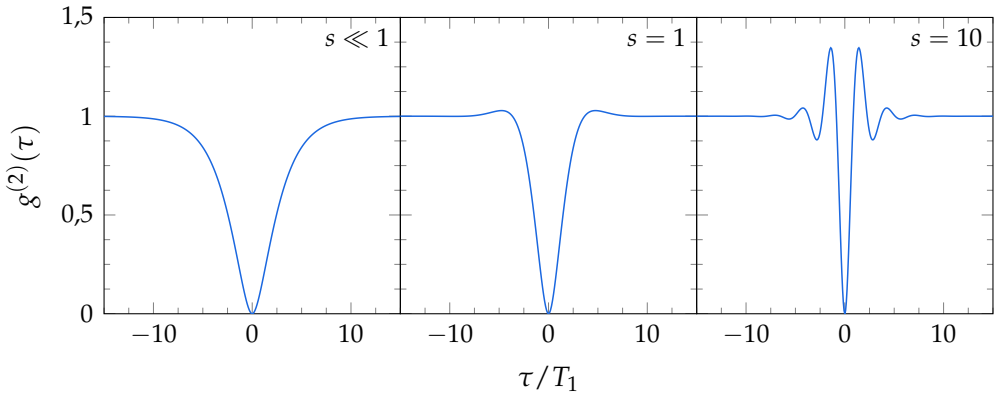


Figure 3.7 — Allure théorique de $g^{(2)}(\tau)$ pour un système à deux niveaux à la limite radiative, pour différentes puissances d'excitation.

3.3.4 $g^{(2)}(\tau)$ en ajoutant un champ laser diffusé

De la même manière qu'au paragraphe 3.2.2, on remplace l'opérateur dipolaire $\tilde{S}_-$ du système à deux niveaux dans le référentiel tournant du laser par $\tilde{S}_- + \tilde{\alpha}$, où $\tilde{\alpha}$ est une constante complexe correspondant à l'amplitude parasite qui s'ajoute au signal

émis par la boîte quantique, et cohérent avec lui. Ainsi, $G^{(2)}(\tau)$ s'écrit :

$$G^{(2)}(\tau) \propto \left\langle (\tilde{S}_+(t) + \tilde{\alpha}^*)\,(\tilde{S}_+(t+\tau) + \tilde{\alpha}^*)\,(\tilde{S}_-(t+\tau) + \tilde{\alpha})\,(\tilde{S}_-(t) + \tilde{\alpha}) \right\rangle \tag{3.3.16}$$

Le développement de cette expression donne :

$$\begin{aligned} G^{(2)}(\tau) \propto\ & G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau) + 2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\mathrm{QD}} + |\tilde{\alpha}|^4 \\ & + \Big[\tilde{\alpha}\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle + \tilde{\alpha}\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t)\right\rangle \\ & \quad + |\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau) + \tilde{\alpha}^2 \left\langle \tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_+(t)\right\rangle + 2\tilde{\alpha}|\tilde{\alpha}|^2 \left\langle \tilde{S}_+(t)\right\rangle + \text{c.c.}\Big] \end{aligned} \tag{3.3.17}$$

où $G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)$ désigne la fonction d'autocorrélation de l'intensité en l'absence de champ laser parasite, c'est-à-dire qu'elle répond à l'expression (3.3.12).

On constate que l'expression obtenue est bien plus lourde que (3.2.12) pour $G^{(1)}(\tau)$. Il apparaît des corrélateurs à trois opérateurs tels que $\langle S_+(t)\,S_+(t+\tau)\,S_-(t+\tau)\rangle$ et un corrélateur $\langle S_+(t+\tau)\,S_+(t)\rangle$ avec deux opérateurs tournant dans le même sens. Ces corrélateurs ne pourront être calculés que dans le chapitre 5.

Pour comprendre l'effet de ces termes supplémentaires, la figure 3.8 est une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ effectuée à très haute puissance ($s_0 \approx 40$) avec l'interféromètre de HBT exposé au paragraphe suivant. On peut remarquer que, de manière surprenante, le creux lié au dégroupement des photons s'inverse, ce qui est la signature de *groupement* de photons. Ce phénomène est lié au fond laser diffusé et donc à ces termes supplémentaires. Le chapitre 5 développera un modèle plus complet permettant de les calculer et de décrire ainsi le comportement de $g^{(2)}(\tau)$ à toutes les puissances, en présence d'un champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation. Ces termes ont toutefois un effet beaucoup moins important qu'avec $g^{(1)}(\tau)$; pour le moment, nous nous contenterons de négliger le fond parasite en se cantonnant à des puissances suffisamment basses.

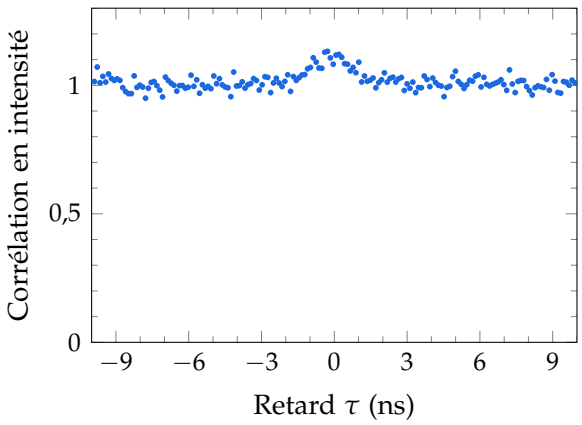


FIGURE 3.8 — Mesure de $g^{(2)}(\tau)$ à très haute puissance ($s_0 \approx 40$) avec la boîte QDIII-bis.

3.3.5 Interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss

L'interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss (HBT) est un interféromètre en intensité, dans le sens où il mesure les corrélations en intensité entre deux voies provenant ou pas d'une même source [Hanbury Brown & Twiss 1954, 1956a,b]. Des corrélations sont susceptibles d'apparaître lorsque l'on observe en particulier une source thermique comme une étoile — ce pour quoi cet interféromètre a été conçu au départ — mais il permet aussi d'identifier une source de photons uniques. Le montage que nous utilisons est schématisé sur la figure 3.9. Il est constitué d'une lame séparatrice divisant un faisceau en deux, puis de deux détecteurs connectés à une carte de corrélation.

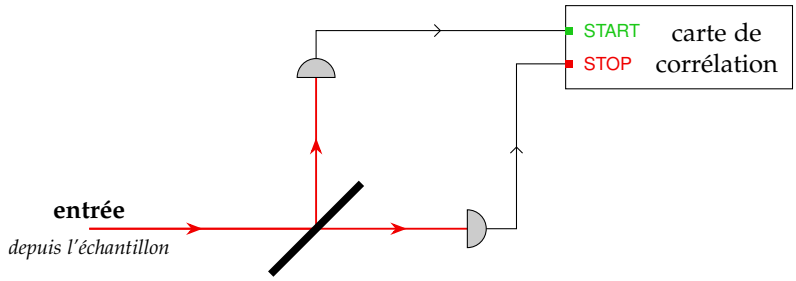


Figure 3.9 — Schéma d'un interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss.

Les deux détecteurs et la carte de corrélation nous permettent de connaître quelle est la probabilité de détection jointe d'un photon sur chacun des deux détecteurs, avec un retard τ entre ces deux détections. Autrement dit, la probabilité de détection d'une paire de photons séparés de τ. Le principe de la mesure est expliqué au paragraphe 3.3.6.

Nous suivons ici un raisonnement décrit dans la littérature pour le taux de détection à un détecteur [Scully & Zubairy 1997, cf. § 4.2, p. 111–113 ; Mandel & Wolf 1995, cf. § 12.2, p. 573–576], que nous utiliserons ici pour le taux de détection à deux détecteurs.

Appelons $w_2(t, t+\tau)$ le taux de comptage joint des photons aux instants t et $t+\tau$. L'idée est que la probabilité jointe de détecter un photon sur chacun des détecteurs entre les temps t et $t+\mathrm{d}t$ sur le premier détecteur et $t+\tau$ et $t+\tau+\mathrm{d}t$ sur le second détecteur est proportionnelle à $w_2(t, t+\tau)\mathrm{d}t^2$, τ étant positif.

Dans un premier temps, la probabilité par unité de temps d'obtenir l'état final $|f\rangle$ après la détection d'un photon à t et à $t+\tau$, à partir de l'état initial $|i\rangle$, est proportionnelle à :

$$w_2(t, t+\tau) = |\langle f|E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)|i\rangle|^2 \tag{3.3.18}$$

Or on cherche à connaître $w_2(t,t+\tau)$ quel que soit l'état final $|f\rangle$. On somme donc

l'expression précédente sur l'ensemble des états finaux possibles :

$$w_2(t, t+\tau) = \sum_f |\langle f|E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)|i\rangle|^2 \tag{3.3.19}$$

$$= \sum_f \langle i|E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)|f\rangle\langle f|E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)|i\rangle \tag{3.3.20}$$

$$= \langle i|E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)|i\rangle \tag{3.3.21}$$

en utilisant la relation de fermeture $\sum_f |f\rangle\langle f| = 1$.

De plus, ne connaissant pas précisément l'état $|i\rangle$ pour chaque mesure, nous en réalisons une mesure statistique, ce qui peut être décrit en sommant l'expression précédente sur l'ensemble des états possibles du champ initial, chacun affecté d'une probabilité P_i :

$$w_2(t, t+\tau) = \sum_i P_i \langle i|E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)|i\rangle \tag{3.3.22}$$

En définissant l'opérateur densité du champ $\rho = \sum_i P_i|i\rangle\langle i|$, on obtient :

$$w_2(t, t+\tau) = \mathrm{Tr}[\rho\, E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)] \tag{3.3.23}$$

$$= \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \tag{3.3.24}$$

On reconnaît l'expression (3.1.7) de $G^{(2)}(\tau)$, ainsi :

$$w_2(t, t+\tau) = G^{(2)}(\tau) \tag{3.3.25}$$

Ceci montre que le taux de détection à deux photons séparés de τ, c'est-à-dire ce qui est mesuré avec le montage HBT, est proportionnel à $G^{(2)}(\tau)$.

Pour obtenir la fonction normalisée $g^{(2)}(\tau)$, il faudra normaliser la mesure par rapport aux valeurs de corrélation aux temps longs. En effet, lorsque τ est très grand, les champs en t et en $t+\tau$ ne sont plus corrélés : l'ordre des temps n'importe plus et la covariance entre $E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t)$ et $E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)$ est nulle. On a donc :

$$G^{(2)}(\tau \to \infty) = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \left\langle E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau)\right\rangle = G^{(1)}(0)^2 \tag{3.3.26}$$

Ainsi, $g^{(2)}(\tau \to \infty) = 1$. En normalisant $G^{(2)}(\tau)$ aux temps longs, on obtient $g^{(2)}(\tau)$.

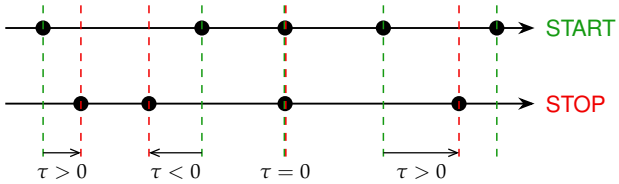
3.3.6 Comment se construit une mesure de corrélation de photons ?

Les détecteurs de photons émettent une impulsion TTL lorsqu'ils détectent un photon. Nous admettrons donc que détecter une impulsion TTL au niveau de la carte de corrélations correspond à détecter un photon sur le détecteur.

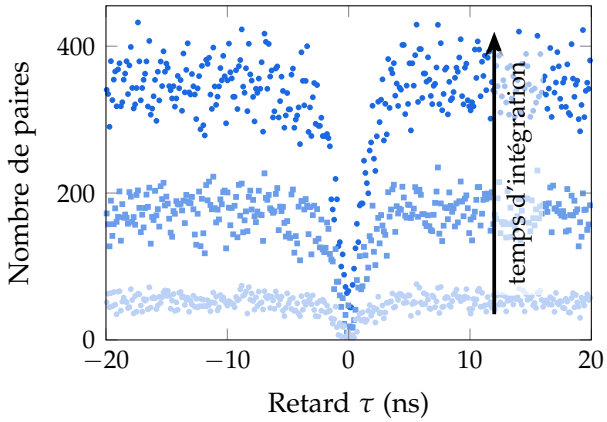
La carte de corrélation a deux entrées : une entrée START qui permet de déclencher un chronomètre, et une entrée STOP qui permet d'arrêter le chronomètre. Le temps

mesuré entre la détection START et détection STOP est ensuite enregistré. Nous appellerons ce temps « retard », car il correspond au retard de la détection STOP par rapport à la détection START.

Il est également important de comprendre que la mesure d'un retard est associé à une *paire* de photons START-STOP. Une session de mesure consiste à enregistrer les retards associés à toutes les paires de photons START-STOP détectées. Pour finalement construire la courbe de corrélation, on trace l'histogramme de ces retards.



(a) Pour construire une mesure de corrélation, on mesure les retards entre chaque paire de photon...



(b) ...puis on construit un histogramme de ces retards. Ici, on voit l'évolution d'une mesure au fur et à mesure de l'intégration.

FIGURE 3.10 — Principe général d'une mesure de corrélation de photons.

La figure 3.10a explique le principe de mesure d'un retard τ. Les flèches correspondent à des axes temporels et les points noirs marquent la détection d'un photon sur la voie START ou sur la voie STOP. Un retard nul correspond à la détection simultanée de photons sur START et STOP. A priori, on ne peut pas mesurer de retard négatif sachant qu'un événement détecté sur START doit obligatoirement précéder un événement STOP. Cependant, l'utilisation de câbles très longs pour relier le détecteur STOP à la carte de corrélation permet de décaler l'instant de détection simultanée ($\tau = 0$) d'un temps correspondant à la différence de longueur des câbles, et ainsi de détecter un événement STOP correspondant à un photon ayant été absorbé *avant* celui qui correspond à l'événement START. Cela permet de mesurer un retard

$\tau < 0$.

La figure 3.10b montre de manière qualitative comment évolue l'histogramme de la mesure de corrélation lorsque l'on augmente le temps d'intégration, ce qui revient à intégrer plus de retards entre des paires de photons START-STOP. On remarquera l'allure caractéristique de cette mesure, qui présente un creux autour du retard nul. Cela signifie que la probabilité de détecter un photon STOP sachant que l'on détecte un photon START au même instant est très faible : il s'agit de la mesure de corrélation de photons pour une source de photons uniques.

Carte de corrélation

Pour effectuer les mesures de corrélation, nous utilisons une carte Becker & Hickl (BH) SPC-630. Il s'agit d'une carte à placer directement dans un ordinateur. Elle possède deux entrées appelées CFD et SYNC, respectivement correspondant à START et à STOP.

Le principe grossier de fonctionnement est qu'une rampe de tension est déclenchée à la réception d'une impulsion sur CFD, puis la valeur de la tension est lue avec un convertisseur analogique-numérique (ADC, *analog-digital converter*) à la réception d'une impulsion sur SYNC.

Cette carte permet de faire des corrélations sur des fenêtres entre 50 ns et 2 µs. Elle a une résolution minimale de 7 ps sur l'entrée CFD, bien en-dessous de la résolution temporelle des détecteurs, qui sera de 50 ps pour les plus rapides. Suivant la configuration, elle peut réaliser des histogrammes sur 256, 1024 ou 4096 canaux — c'est-à-dire des classes d'histogramme — sur une mémoire de 16 bits par canal, ce qui signifie que la carte sature à 2^{16} paires comptées sur un canal.

Un mode *time-tag**, appelé FIFO pour cette carte du fait de l'utilisation d'un registre *first in–first out*, est également disponible, mais la résolution sera limitée à 256 canaux sur 50 ns. Nous n'avons jamais utilisé ce mode car il est surtout utile si le signal est très fort, ou pour effectuer des corrélations sur des temps très longs.

Résolution temporelle du système de détection

La mesure de corrélation est affectée par la résolution temporelle du système de détection, a priori limitée par deux facteurs :

- la gigue des détecteurs ;
- la résolution temporelle de la carte de corrélation.

* Le mode *time-tag* consiste à enregistrer les valeurs absolues des temps d'arrivée de chaque photon sur chaque voie, ce qui permet de faire des corrélations entre toutes les paires de photon et pas seulement la première détectée. Cela est surtout intéressant lorsque le taux de coïncidences dans la fenêtre de mesure est élevé et que la coïncidence à la première paire a lieu sur un temps caractéristique court devant la largeur de la fenêtre de mesure.

Nous avons vu que la carte de corrélation est extrêmement précise avec une résolution de quelques picosecondes, alors que les détecteurs ont une résolution de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes. La résolution globale du système est donc déterminée surtout par les détecteurs.

Quelle que soit la source limitant la résolution du système de détection, il est assez simple de mesurer sa réponse impulsionnelle. Pour cela, on utilise l'interféromètre de HBT avec des impulsions laser issues du laser Ti:Sa, qui sont très courtes (quelques picosecondes) devant la résolution des détecteurs (1 ns environ). On mesure ainsi la réponse impulsionnelle instrumentale (IRF, *instrument response function*). Sa largeur est donc caractéristique de la résolution temporelle du système de mesure de corrélation. Une mesure d'IRF est représentée sur la figure 3.11, en utilisant les deux APD Perkin-Elmer SPCM-AQRH-16 (cf. paragraphe 2.1.2, p. 47).

Pour prendre en compte l'IRF dans la confrontation entre théorie et mesures, on pourrait déconvoluer la mesure, mais cela est une opération numérique très instable et peu pratique. La méthode généralement utilisée est plutôt de convoluer la courbe théorique avec l'IRF, puis de comparer la courbe théorique ainsi convoluée et la mesure.

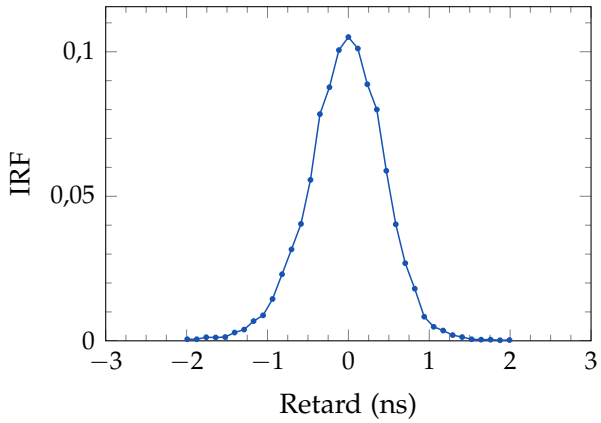


FIGURE 3.11 — Réponse impulsionnelle (IRF, pour *Instrument Response Function*) du système de mesure de corrélation de photons, pour un pas en temps correspondant à 1024 points sur une fenêtre de 120 ns. Cette courbe est une densité de probabilité, la somme de ses points étant égale à 1. Sa largeur à mi-hauteur vaut 1,0 ns.

3.3.7 Mesures de $g^{(2)}(\tau)$

La figure 3.12 présente des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ à différentes puissances d'excitation, pour les boîtes B47-9 et QDIII-bis. On peut y voir les courbes de corrélation mesurées, dont le seul traitement a été de les normaliser. La courbe rouge est une courbe théorique calculée à partir du modèle du paragraphe 3.3.3 (p. 91) et la formule (3.3.12), puis convoluée avec la réponse impulsionnelle (IRF) du système de détection,

qui est représentée dans le graphe en haut à gauche de la figure 3.12a.

Sur toutes les courbes, on observe le creux à $\tau = 0$ lié au dégroupement des photons, avec $g^{(2)}(0) < 0{,}5$ sur la majorité des courbes, signature d'une source de photons uniques. À haute puissance, on peut distinguer un rebond de chaque côté du creux central, correspondant aux oscillations de Rabi que nous avions déjà observées sur les mesures de $g^{(1)}(\tau)$. De plus, lorsque la puissance d'excitation est élevée, le creux est plus étroit et moins profond : pour B47-9 (courbes (a)), à $s_0 = 7{,}34$ la largeur à mi-hauteur vaut 1 ns et $g^{(2)}(0) = 0{,}54$. Le creux s'élargit tout en s'approfondissant lorsque l'on diminue la puissance : à $s_0 = 0{,}22$, la largeur à mi-hauteur vaut 2,6 ns et $g^{(2)}(0) = 0{,}14$. De même pour QDIII-bis (courbes (b)), la largeur à mi-hauteur passe de 0,9 à 1,8 ns et $g^{(2)}(0)$ allant de 0,79 à 0,27 lorsque la puissance est réduite de $s_0 = 8{,}6$ à 0,40.

À basse puissance, l'expression théorique (3.3.12) de $g^{(2)}(\tau)$ ne dépend plus de la puissance, ν tendant vers $\frac{i}{2}\left|\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2}\right|$, et la largeur de la courbe se trouve déterminée uniquement par T_1 et T_2. Lorsque la puissance est plus élevée, les termes oscillants liés aux oscillations de Rabi deviennent plus rapides que les temps d'amortissement T_1 et T_2. Cela a pour effet de rendre le creux plus étroit et la convolution par la réponse du système de mesure réduit sa profondeur.

Les mesures présentées sur la figure 3.12 sont effectuées à des puissances d'excitation assez basses pour maintenir un niveau de fond parasite négligeable devant l'intensité de photoluminescence de la boîte. On utilise donc l'expression (3.3.12) de $g^{(2)}(\tau)$ pour estimer l'un des deux temps T_1 ou T_2. D'après les considérations du paragraphe 3.3.3, T_1 et T_2 jouent un rôle symétrique dans l'expression théorique de $g^{(2)}(\tau)$. Par conséquent, on utilise les valeurs estimées grâce aux mesures de $g^{(1)}(\tau)$ afin de fixer T_1 ou T_2, en choisissant le temps le plus précisément évalué. On laisse l'autre libre. Ceci mène au résultat suivant :

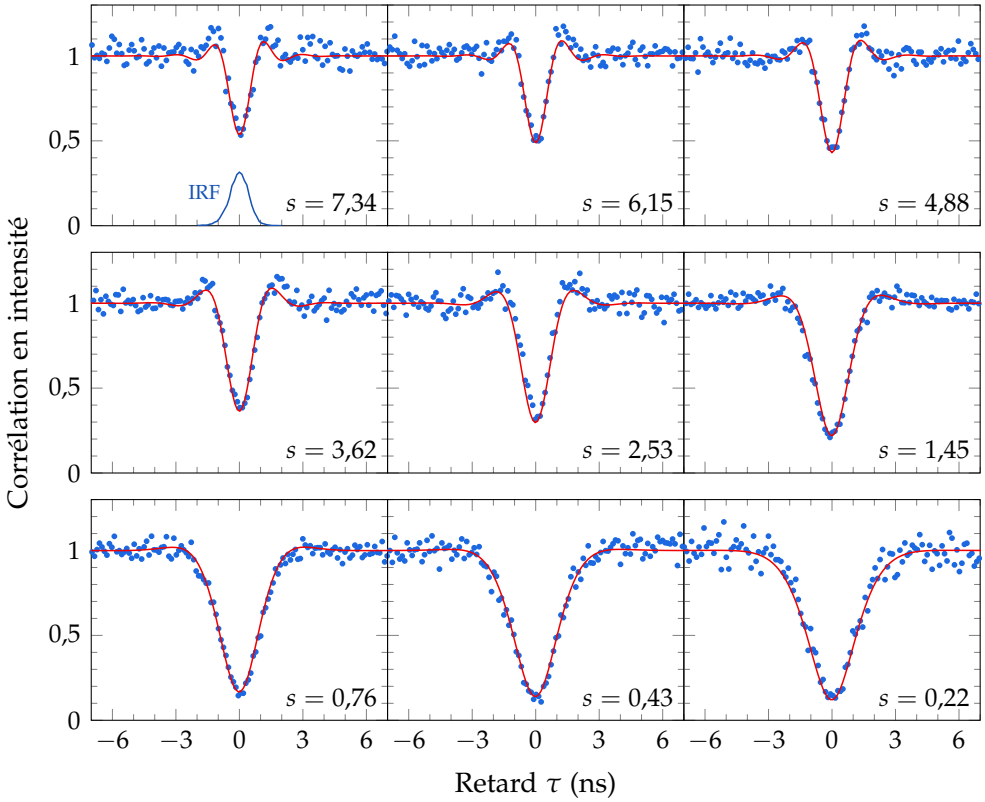
	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0{,}37 \pm 0{,}04$ ns	$0{,}82 \pm 0{,}03$ ns
T_2	0,54 ns (fixé)	0,75 ns (fixé)

où les incertitudes indiquées sont égales à 2σ avec σ l'erreur-type estimée par la procédure d'ajustement.

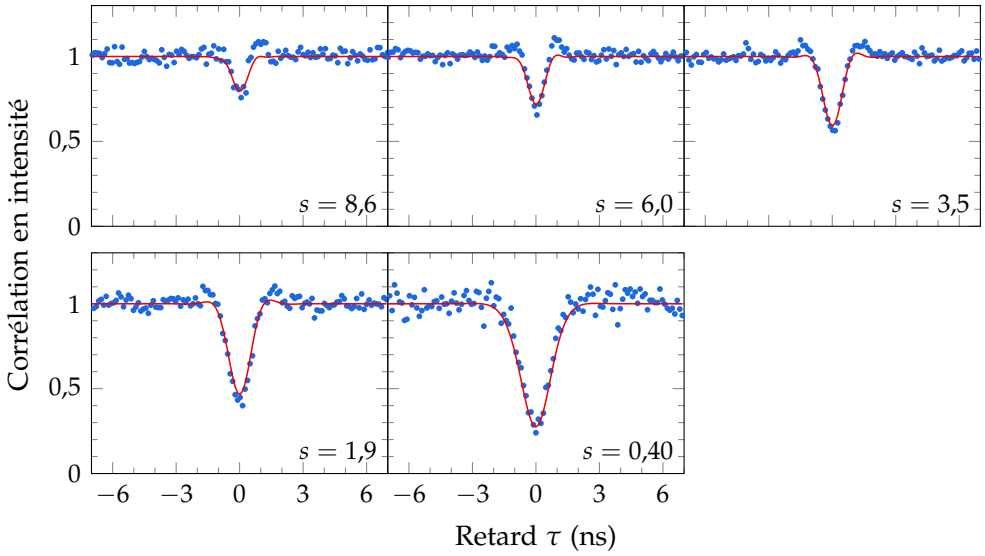
Pour rappel, les valeurs de T_1 estimées avec les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ sont $0{,}43 \pm 0{,}12$ ns pour QDIII-bis et $0{,}9 \pm 0{,}2$ ns pour B47-9, qui sont donc compatibles avec les valeurs établies ici.

Il faut préciser deux points :

- les incertitudes présentées ici ne tiennent pas compte des incertitudes sur les autres paramètres du $g^{(2)}(\tau)$, en particulier de l'incertitude sur T_2 qui est donc forcément sous-estimée. Une manière d'estimer l'impact de cette incertitude est de changer la valeur fixée de T_2 d'une extrême à l'autre et de recommencer l'ajustement. On constate alors une variation de T_1 de $\pm 0{,}05$ ns



(a) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte B47-9. L'IRF du système de détection est représentée sur le graphe en haut à gauche, et permet d'avoir une idée de l'effet du système de détection sur la mesure.



(b) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis.

FIGURE 3.12 — Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. Les points bleus correspondent à la courbe expérimentale, la courbe rouge à un ajustement théorique.

pour les mesures sur les deux boîtes ;

- on fait ici l'hypothèse que les sessions de mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et de $g^{(2)}(\tau)$ sont effectuées dans les mêmes conditions, même si elles n'ont pas eu lieu le même jour. En effet, il peut arriver que le refroidissement ne se passe pas de manière identique d'un jour à l'autre et change l'environnement électrostatique de la boîte. Ici, cependant, la qualité des ajustements et la compatibilité des valeurs des paramètres vient appuyer cette hypothèse.

Résultats finaux sur les temps T_1 et T_2

Les estimations finales pour T_1 et T_2 sont les suivantes :

	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0{,}37 \pm 0{,}05$ ns	$0{,}82 \pm 0{,}05$ ns
T_2	$0{,}54 \pm 0{,}10$ ns	$0{,}75 \pm 0{,}05$ ns

Les incertitudes sont purement liées ici à la procédure d'ajustement en maintenant tous les paramètres fixés, à l'exception de T_1 et T_2, ainsi que, selon les cas, du fond parasite provenant du laser d'excitation et du coefficient liant Ω^2 à la référence de puissance d'excitation (mesurée au puissancemètre). Les incertitudes expérimentales, par exemple sur la mesure de la puissance d'excitation, ne sont pas prises en compte.

Il est intéressant d'évaluer à quel point ces émetteurs se trouvent proches de la limite radiative, où l'on a $T_2 = 2\,T_1$. On utilise pour cela le rapport $\frac{T_2}{2\,T_1}$, qui sera donc au plus égal à 1, et qui vaut $0{,}73 \pm 0{,}17$ dans le cas de QDIII-bis et $0{,}46 \pm 0{,}04$. La boîte quantique QDIII-bis est donc bien plus près de la limite radiative que B47-9.

3.4 Effets d'un filtrage spectral sur le dégroupement des photons

3.4.1 Diffusion des photons du laser par le système à deux niveaux

Nous avons vu au paragraphe 1.4.6 (p. 38) que l'intensité émise par la boîte quantique peut se diviser en deux composantes : une composante cohérente liée à la diffusion élastique, et une composante incohérente liée à la diffusion inélastique. La composante cohérente est liée à l'émission du dipôle moyen et s'apparente à celle d'un dipôle classique piloté par le champ du laser d'excitation, qui a donc le même profil spectral que le laser ; la composante incohérente est liée à la fluctuation du dipôle autour du dipôle moyen, conduisant à une raie spectrale ayant une largeur intrinsèque liée au temps de vie de fluorescence, comme lorsque le système est pompé de manière non-résonnante. À basse puissance, nous avons vu également que la composante cohérente devient prépondérante sur la composante incohérente. Il est alors légitime de se demander si la boîte est toujours un bon émetteur de

photons uniques à basse puissance. Le laser étant diffusé élastiquement, on peut penser au premier abord que les photons diffusés devraient se comporter de la même manière que si l'on observait directement le laser. En particulier, les photons devraient suivre une statistique poissonnienne. Pourtant, l'expérience démontre le contraire : à basse puissance, les mesures de dégroupement des photons de la figure 3.12 sont sans équivoque : la source reste un bon émetteur de photons uniques, même pour un rapport $I_{\text{él}}/I_{\text{inél}} = 55\%$ comme c'est le cas pour QDIII-bis avec $s_0 = 0{,}4$, où $g^{(2)}(0) = 0{,}25$.

Une manière de voir les choses est de considérer l'émission résonnante comme de la diffusion des photons sur la transition, et de voir comment s'ajoutent les amplitudes de diffusion, une technique utilisée* dans [Dalibard & Reynaud 1983]. Ce sont des processus non-linéaires de diffusion à plusieurs photons qui sont alors responsables de l'élargissement spectral, c'est-à-dire de la composante incohérente. De manière générale, on définit un état initial $|\psi_i\rangle$ comme le système à deux niveaux en présence de photons du laser d'excitation, avant diffusion. Après diffusion des photons du laser par le système à deux niveaux, le système se trouvera dans l'état final $|\psi_f\rangle$. Ces deux états sont liés par la matrice S décrivant le processus de collision :

$$|\psi_f\rangle = S|\psi_i\rangle \tag{3.4.1}$$

L'état initial est constitué du système à deux niveaux dans l'état fondamental $|g\rangle$ et de N photons dans le mode du laser à la longueur d'onde λ_{L} :

$$|\psi_i\rangle = |g, N\lambda_{\text{L}}\rangle \tag{3.4.2}$$

Dans le régime de diffusion Rayleigh, c'est-à-dire à une puissance d'excitation très faible devant la puissance de saturation du système à deux niveaux, on a $\Omega \ll \Gamma = \frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2}$ (on se place à la limite radiative pour simplifier les expressions), l'état final peut être développé en se restreignant à l'ordre 2 :

$$|\psi_f\rangle = |g, N\lambda_{\text{L}}\rangle + \sum_{\lambda} S_1(\lambda)|g, (N-1)\lambda_{\text{L}}, \lambda\rangle + \sum_{(\lambda,\lambda')} S_2(\lambda,\lambda')|g, (N-2)\lambda_{\text{L}}, \lambda, \lambda'\rangle \tag{3.4.3}$$

où $S_1(\lambda)$ et $S_2(\lambda,\lambda')$ sont les éléments de matrice de S correspondant respectivement à la diffusion d'un photon et de deux photons par le système à deux niveaux. On peut représenter $|\psi_f\rangle$ sous la forme de diagrammes, comme sur la figure 3.13, où les termes (0), (1) et (2) sont respectivement le premier, le deuxième et le troisième terme de la décomposition (3.4.3).

Ces processus peuvent être représentés de manière plus conventionnelle sur la figure 3.14, permettant de mieux comprendre ce qu'ils signifient d'un point de

* Le calcul présenté dans cet article reprend celui qui est détaillé dans [Dalibard 1981], où l'on pourra en particulier se référer à la discussion physique des pages 99 et 100.

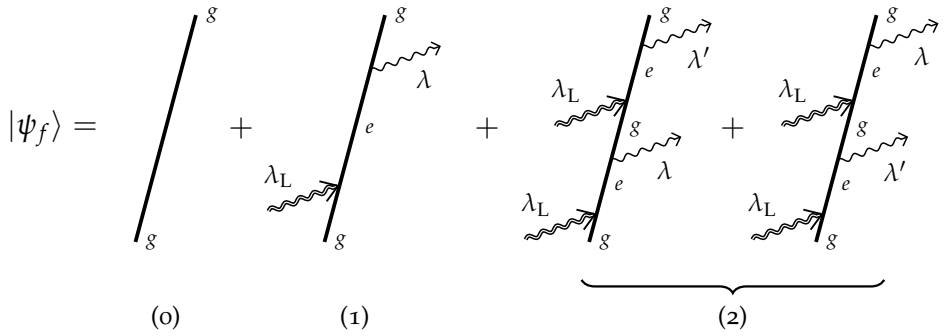
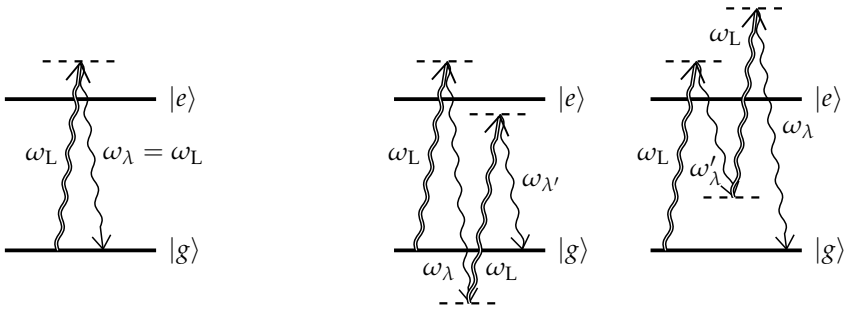


FIGURE 3.13 — Représentation diagrammatique de l'état après diffusion des photons du laser sur le système à deux niveaux, présentant les deux premiers ordres des processus de diffusion en jeu.

vue énergétique. L'ordre (0), non représenté, correspond à 0 photon diffusé, l'ordre (1) correspond à la diffusion d'un photon à λ_L en un photon à λ, et l'ordre (2) correspond à deux photons à λ_L diffusés en deux photons à λ et λ' respectivement. La conservation de l'énergie amènera à $\omega_\lambda = \omega_L$ pour l'ordre (1) et $\omega_\lambda + \omega_{\lambda'} = 2\omega_L$ pour l'ordre (2).



(a) Processus du premier ordre.

(b) Processus du deuxième ordre.

FIGURE 3.14 — Diagrammes d'énergie représentant les deux premiers ordres du processus de diffusion des photons du laser à ω_L sur le système à deux niveaux.

Sans détailler les calculs que l'on retrouvera dans [*ibid.*] et [DALIBARD 1981], dans la limite d'une faible excitation ($\Omega \ll \Gamma$), ce raisonnement mène à l'expression de $P(\tau)$, qui est, pour une paire de photon donnée, la probabilité de détecter le second photon à τ sachant le premier détecté à 0. Cette probabilité est une manière d'estimer $G^{(2)}(\tau)$ comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.3 qui se repose sur [PAUL 1982, cf. § VI.A]. On obtient $P(\tau)$ sous la forme du module carré de la transformée de Fourier du spectre de diffusion à deux photons $S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'})$ (qui correspond à l'élément de matrice S_2 défini précédemment) :

$$P(\tau) \propto \left| \iint \mathrm{d}\omega_\lambda \mathrm{d}\omega_{\lambda'} S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'})\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\lambda \tau_A}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\lambda'} \tau_B} \right|^2 \tag{3.4.4}$$

(a) Émission de deux photons Rayleigh (diffusion élastique).

(b) Diffusion inélastique.

FIGURE 3.15 — Processus résonnants de diffusion du deuxième ordre.

où τ_A et τ_B sont les instants d'émission des photons détectés sur les détecteurs A et B respectivement ($\tau = \tau_B - \tau_A$), et où $S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'})$ s'exprime :

$$S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'}) \propto 2i\pi \cdot \delta(\omega_\lambda - \omega_L)\,\delta(\omega_{\lambda'} - \omega_L) + \delta(\omega_\lambda + \omega_{\lambda'} - 2\omega_L)\left[\frac{1}{\omega_\lambda - \omega_0 + i\frac{\Gamma}{2}} + \frac{1}{\omega_{\lambda'} - \omega_0 + i\frac{\Gamma}{2}}\right] \quad (3.4.5)$$

On peut reconnaître dans cette expression deux termes correspondant aux deux processus résonnants de diffusion à deux photons, tous les deux représentés sur la figure 3.15 : le premier terme correspond à la diffusion de deux photons Rayleigh (diffusion élastique de deux photons, diagramme (a)), et le deuxième terme correspond à la diffusion d'un photon à $2\omega_L - \omega_0$ et d'un photon à ω_0 (diffusion inélastique de deux photons, diagramme (b)).

En réinjectant l'expression de S_2 dans l'intégrale de (3.4.4), on obtient (pour $\tau > 0$) :

$$P(\tau) \propto \left|e^{-i\omega_L\tau} - e^{-i\omega_0\tau}\, e^{-\Gamma\tau/2}\right|^2 \quad (3.4.6)$$

soit, en développant l'expression :

$$P(\tau) \propto 1 + e^{-\Gamma\tau} - 2\cos((\omega_L - \omega_0)\tau)\, e^{-\Gamma\tau/2} \quad (3.4.7)$$

et pour un désaccord nul ($\omega_L = \omega_0$) :

$$P(\tau) \propto 1 + e^{-\Gamma\tau} - 2\, e^{-\Gamma\tau/2} \quad (3.4.8)$$

Ce résultat est identique à l'expression (3.3.14) de $g^{(2)}(\tau)$, établie dans la limite des très faibles puissances, avec le dégroupement des photons caractéristique d'une source de photons uniques. On remarquera que ce calcul montre que le premier terme provient de la composante Rayleigh, le deuxième terme de la composante incohérente et le dernier terme est le terme croisé qui apparaît lorsque l'on développe le module carré de l'expression (3.4.6). C'est ce dernier terme qui est responsable du dégroupement des photons, ce qui est très intéressant : il est issu des interférences entre la composante Rayleigh et la composante incohérente. Dans cette perspective, donc, si l'on enlève l'une des deux contributions, le terme d'interférences et donc le dégroupement des photons disparaissent.

Filtrage spectral de la fluorescence de résonance et effet sur le dégroupement

L'un des avantages de cette approche est qu'elle établit le spectre de diffusion à deux photons avec la composante Rayleigh et les composantes inélastiques aisément identifiables. On peut donc s'intéresser à l'effet d'un filtrage spectral de la fluorescence de résonance sur le dégroupement des photons. On définit $f_A(\omega)$ et $f_B(\omega)$ les amplitudes de filtrage associées aux filtres placés devant les détecteurs A et B du montage HBT. Pour prendre en compte les filtres, l'expression (3.4.4) devient :

$$P(\tau) \propto \left| \iint \mathrm{d}\omega_\lambda \mathrm{d}\omega_{\lambda'} S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'}) f_A(\omega_\lambda) f_B(\omega_{\lambda'})\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_\lambda \tau_A}\, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\lambda'} \tau_B} \right|^2 \tag{3.4.9}$$

Si l'on choisit correctement les filtres, on peut évaluer l'effet de la suppression de la composante inélastique de S_2, c'est-à-dire du second terme de (3.4.5), qui se réduit alors à :

$$S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'}) \propto 2\mathrm{i}\pi \cdot \delta(\omega_\lambda - \omega_L)\, \delta(\omega_{\lambda'} - \omega_L) \tag{3.4.10}$$

On obtient alors $P(\tau) \propto 1$, ce qui signifie que l'on retrouve $g^{(2)}(\tau) = 1$, c'est-à-dire la statistique poissonnienne qui gouverne le laser d'excitation.

Si l'on supprime maintenant la composante élastique de S_2, c'est-à-dire le premier terme, on obtient $P(\tau) \propto \mathrm{e}^{-\Gamma\tau}$. Ce résultat ne considère toutefois qu'une seule paire de photons issue d'un même processus de diffusion du deuxième ordre tel que celui de la figure 3.15b. Avec une source continue réaliste, au bout d'un certain retard τ, aucune corrélation n'est attendue entre les deux photons détectés et on s'attend à une statistique poissonnienne aux temps longs. $P(\tau)$ ne correspond donc pas toujours à une mesure réelle de $G^{(2)}(\tau)$ d'un faisceau de photons provenant d'une source continue. Une piste pour obtenir une estimation correcte de $G^{(2)}(\tau)$ serait de prendre en compte des processus de diffusion d'ordres supérieurs (en s'inspirant par exemple de [Zaidi 1981]).

Ce résultat est néanmoins intéressant car il prévoit un groupement des photons de la paire de photons émise par diffusion inélastique suivant le processus de la figure 3.15b, avec un temps caractéristique qui est le temps de vie $1/\Gamma$. En supprimant la composante Rayleigh, on devrait donc s'attendre à observer du groupement des photons autour de $\tau = 0$ au lieu du dégroupement attendu pour une source de photons uniques.

3.4.2 Mesures à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot

Dans ce paragraphe, nous utiliserons l'interféromètre de Fabry–Pérot présenté au paragraphe 2.3.3 (p. 65) de deux manières : tout d'abord comme spectromètre, afin de faire un spectre de photoluminescence en balayant la longueur de la cavité, puis comme filtre passe-bande fin, où la longueur de cavité reste fixe, ce qui permettra de ne conserver que la composante fine du spectre de photoluminescence correspondant à la diffusion élastique.

La figure 3.16 présente des mesures de spectre de photoluminescence résonnante mesurés à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot, effectuées sur la boîte QDIII-bis. À basse puissance, seule la composante centrale est visible, avec un pied large correspondant à la diffusion inélastique et une raie fine correspondant à la diffusion élastique. Lorsque la puissance augmente, on peut voir apparaître le triplet de Mollow, en particulier la raie à basse énergie, signalée par une flèche sur la mesure à haute puissance. La raie à haute énergie est masquée par l'intervalle accessible par notre système de mesure — en l'occurence la source de tension contrôlant la longueur de cavité.

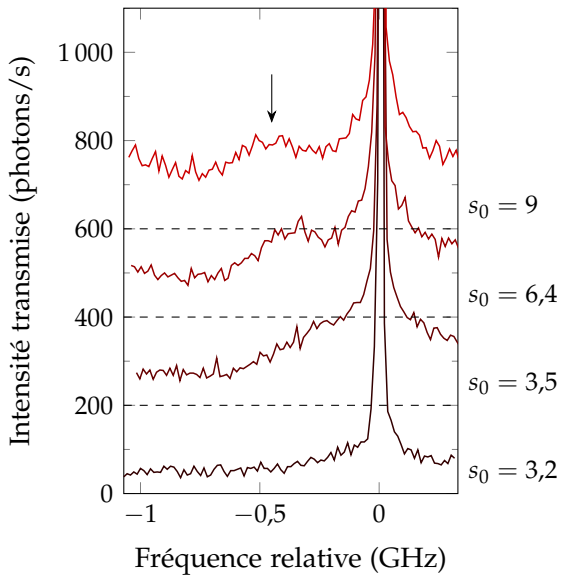


FIGURE 3.16 — Spectres de photoluminescence résonnante mesurés à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot, pour différentes puissances d'excitation. Les mesures pour chaque puissance d'excitation ont été décalées verticalement de 200 photons/s pour chaque courbe — les zéros ont été représentés en pointillés. La puissance d'excitation est indiquée sur la droite sous la forme du paramètre de saturation.

L'idée dans ce qui suit est d'effectuer des mesures de corrélation à l'aide d'un interféromètre de HBT sur la composante élastique du spectre de photoluminescence à basse puissance d'une part et sur la composante inélastique d'autre part. Pour ce faire, nous ajustons la longueur de la cavité Fabry–Pérot de manière à ce qu'elle transmette la composante élastique. La largeur de la fonction de transmission de la cavité est de l'ordre de 10 MHz. La largeur typique de la raie issue de la diffusion inélastique est de 1 GHz, tandis que la largeur spectrale du laser est de l'ordre de 100 kHz. Cela signifie que le filtrage par la cavité n'a essentiellement pas d'incidence sur la composante élastique, mais atténue considérablement la composante inélastique, ne transmettant que 1% de la largeur de la raie. Dans l'idéal, la cavité Fabry–Pérot résonnante avec la composante élastique permet donc de ne récupérer

que celle-ci en transmission et d'accéder au complémentaire — c'est-à-dire à la composante inélastique — en réflexion. Un schéma de principe de ce montage est représenté sur la figure 3.17. En pratique, si la composante élastique est bien la seule transmise par la cavité, ce n'est pas le cas en réflexion : seuls 30% des photons résonnants avec la cavité sont transmis, le reste étant réfléchi. Ainsi la composante élastique est pour l'essentiel réfléchie avec la composante inélastique et l'effet de filtrage en réflexion est faible.

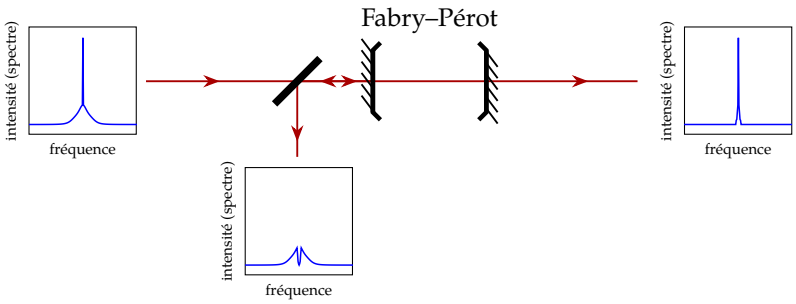


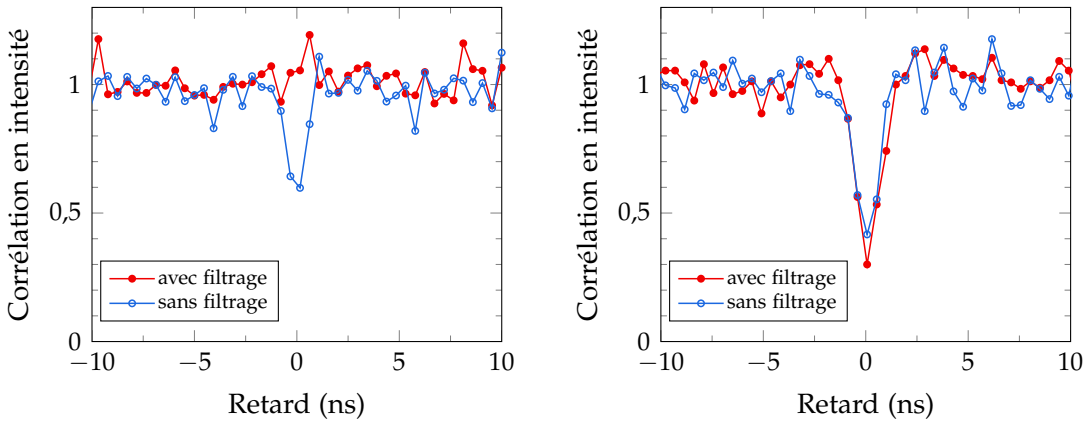
FIGURE 3.17 — Schéma de principe du montage de filtrage de la composante élastique à l'aide du Fabry–Pérot. En transmission, on obtient la raie de diffusion élastique ; en réflexion, on obtient le spectre uniquement lié à la diffusion inélastique.

De plus, étant donné que la cavité n'est pas asservie sur la raie du laser, il y a de fortes dérives qui rendent la mesure délicate : les temps d'intégration pour $\sim 10^4$ photons/s sur chaque détecteur sont de l'ordre de l'heure, et la cavité reste résonnante avec le laser sur un temps de l'ordre de 10 s. Sans implémenter d'asservissement, il faut donc réoptimiser la cavité à la main toutes les 10 s, ce qui est loin d'être idéal pour le confort de l'expérimentateur et pour la qualité de la mesure.

La figure 3.18a correspond à une mesure de corrélation effectuée avec un interféromètre de HBT sur la composante transmise par la cavité, c'est-à-dire la composante élastique. Il s'agit de la courbe rouge dont les points sont des cercles pleins (« avec filtrage »). À titre de comparaison, la mesure a été effectuée dans les mêmes conditions en enlevant la cavité Fabry–Pérot devant l'interféromètre de HBT ; le résultat est la courbe bleue dont les points sont des cercles vides (« sans filtrage »). On constate que le dégroupement visible sur la mesure sans cavité disparaît lorsque l'on ne conserve que la composante élastique. Le filtrage détruit donc le dégroupement des photons et on retrouve la cohérence d'ordre 2 propre au champ d'excitation du laser ($g^{(2)}(\tau) = 1$ pour tout τ).

La figure 3.18b correspond aux mêmes mesures de corrélation, mais la mesure avec filtrage est effectuée sur la lumière réfléchie sur la cavité Fabry–Pérot. Si la cavité est d'assez bonne qualité, la lumière réfléchie comporte toutes les composantes spectrales incidentes sur la cavité, à l'exception de celles qui sont transmises. On observe sur les mesures qu'il n'y a pas de différence visible entre les deux mesures. Cela ne signifie

pas qu'il n'y a aucun effet : en réalité, la transmission à la résonance de la cavité que nous utilisons culmine à 30%, ce qui signifie que 70% de la composante élastique est réfléchie également vers l'interféromètre de HBT. S'il y a un effet, il est donc très probablement caché du fait qu'on est très loin des conditions expérimentales idéales. On ne peut donc pas conclure quant à l'effet du filtrage dans le cas où l'on observe la diffusion inélastique uniquement.



(a) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ en transmission avec et sans la cavité Fabry-Pérot, pour une puissance de l'ordre de la puissance de saturation.

(b) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ en réflexion sur la cavité Fabry-Pérot et sans cavité, pour une puissance inférieure à la puissance de saturation.

FIGURE 3.18 — Mesures de corrélations en intensité en utilisant une cavité Fabry-Pérot pour rejeter ou ne conserver que la composante élastique du spectre de photoluminescence résonnante.

On insistera sur le fait que la bande passante du filtre est plus large que la largeur de la raie élastique de deux ordres de grandeur et plus étroite que la largeur de raie inélastique de deux ordres de grandeur également. Pour les mesures en transmission de la figure 3.18a, le filtrage n'affecte donc pas la composante élastique tout en supprimant l'essentiel de la composante inélastique. La perte du dégroupement est donc liée à la suppression des mécanismes de diffusion inélastique du point de vue du système de détection : ces mécanismes sont essentiels à l'observation du dégroupement, même lorsque la puissance est très faible et que la grande majorité des photons sont émis par diffusion élastique.

Conclusion du chapitre

Après avoir défini les fonctions de corrélation du champ à partir du formalisme de Roy J. Glauber [Glauber 1963], nous avons modélisé et mesuré les fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ pour le champ émis par un système à deux niveaux comme une boîte quantique.

La mesure de $g^{(1)}(\tau)$ est effectuée en mesurant le contraste des franges d'interférences produites à la sortie d'un interféromètre de Michelson, ce contraste étant directement proportionnel à $\left|g^{(1)}(\tau)\right|$. Nous avons pu voir dans les résultats qu'un fond parasite non négligeable était présent et qu'il était indispensable d'ajouter ce fond parasite au modèle pour pouvoir reproduire les mesures. À basse puissance d'excitation, la montée d'une composante très cohérente est caractéristique du régime de diffusion Rayleigh, dans lequel la majorité des photons de photoluminescence sont des photons du laser d'excitation diffusés élastiquement.

La mesure de $g^{(2)}(\tau)$ est quant à elle effectuée en utilisant un interféromètre de Hanbury–Brown et Twiss. On peut ainsi estimer la statistique du faisceau analysé et, en particulier, établir si la source est une source de photons uniques, auquel cas $g^{(2)}(0) < 0{,}5$. Une étude en puissance d'excitation permet d'établir sans équivoque que les boîtes quantiques étudiées sont des sources de photons uniques, et ce même à très basse puissance, dans le régime de diffusion Rayleigh, alors qu'une majorité des photons sont issus du laser d'excitation par diffusion élastique.

Pour comprendre comment le dégroupement de photons se maintient dans le régime de diffusion Rayleigh, nous avons vu qu'en filtrant la composante élastique, c'est-à-dire en ne conservant que les photons diffusés élastiquement, le dégroupement disparaissait. Cela tend à confirmer les conclusions du modèle diagrammatique basé sur [Dalibard & Reynaud 1983] qui implique que le dégroupement est le fruit des interférences entre la composante Rayleigh et la composante inélastique, et ce dans la limite des basses puissances d'excitation.

Enfin, rappelons que les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ sont fortement affectées par la résolution temporelle des détecteurs et subissent une convolution par la réponse instrumentale, ce qui peut dégrader fortement la valeur du creux de dégroupement à $\tau = 0$. Ce problème sera particulièrement important au chapitre 4 pour les mesures d'interférences à deux photons et leur interprétation.

4 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel, indiscernabilité des photons

Une paire de photons indiscernables incidente sur les deux entrées d'une lame séparatrice 50/50 sera transmise vers une seule des deux sorties de la séparatrice. Ce phénomène appelé *coalescence*, fruit d'un phénomène d'interférences prévu par l'optique quantique, est démontré expérimentalement en 1986 par C. K. Hong, Zhe-Yu Jeff Ou et Leonard Mandel [Hong *et al.* 1987]. L'interféromètre de Hong–Ou–Mandel est depuis devenu l'outil permettant de mesurer l'indiscernabilité des photons, une caractéristique essentielle pour l'information quantique en général [Nielsen & Chuang 2000 ; Gisin *et al.* 2002 ; Fox 2006].

Les interférences à deux photons sont relativement simples à comprendre avec des ondes et le modèle des trains d'onde. Qualitativement, si l'on observe la somme de deux ondes sur une durée plus courte que la durée moyenne d'un train d'onde, des interférences pourront être mesurées. Si cela ne suffit pas à expliquer le phénomène de coalescence qui est intrinsèquement lié à la notion de photon, cela permet déjà de comprendre une partie de la dynamique de ce phénomène liée à la notion de cohérence.

Dans ce chapitre, nous établissons formellement le comportement des interférences à deux photons sur une séparatrice, puis expérimentalement avec un interféromètre de Hong–Ou–Mandel. Nous étudions l'indiscernabilité des photons émis par l'exciton neutre de la boîte QDIII-bis excité de manière résonante par un laser continu, dont la cohérence joue un rôle absolument incontournable. Les mesures d'indiscernabilité en continu sont fortement affectées par la résolution temporelle des détecteurs et comportent souvent plusieurs composantes temporelles qui ne sont pas bien décrites par les critères quantitatifs utilisés habituellement dans la littérature. Nous définissons un temps caractéristique appelé *fenêtre temporelle de coalescence* (FTC), qui quantifie le retard moyen entre les deux détections au bout duquel le phénomène de coalescence n'est plus visible entre les deux photons détectés. La FTC permet de rendre compte des différentes composantes présentes dans les mesures d'indiscernabilité.

4.1 Interférences à deux photons 112
4.2 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel avec un émetteur unique 120
4.3 Étude expérimentale de l'indiscernabilité 134
Conclusion du chapitre 146

4.1 Interférences à deux photons

Les interférences à deux photons, ou interférences du quatrième ordre, sont mesurées en détectant les coïncidences sur deux détecteurs D_1 et D_2. Dans un premier temps, nous nous intéresserons au taux de coïncidences, c'est-à-dire au taux de détection simultanée d'une paire de photons sur D_1 et D_2. Dans un second temps, nous prendrons en compte la séparation temporelle τ entre les deux détections.

4.1.1 Expériences historiques et interprétation qualitative

La première démonstration expérimentale des interférences à deux photons est due à Hong, Ou et Mandel en 1987 [Hong *et al.* 1987], où deux faisceaux jumeaux sont produits par diffusion paramétrique à l'aide d'un cristal non-linéaire de KDP, puis combinés sur une séparatrice. Deux photomultiplicateurs détectent les photons à chacune des sorties de la séparatrice et émettent des impulsions vers un compteur de coïncidences. Le taux de détection joint est ainsi mesuré et une baisse de ce taux est observé, signature des interférences à deux photons. Citons également l'article de revue [Paul 1986]. D'un point de vue théorique, on pourra se référer à [Fearn & Loudon 1989] qui reprend la théorie des interférences à deux photons sur une séparatrice et s'intéresse en particulier à l'effet du recouvrement entre les deux modes du champ qui interfèrent sur la séparatrice, ce qui sera particulièrement intéressant au paragraphe 4.1.4.

Il faut différencier les interférences dites à un photon et les interférences dites à deux photons, que l'on appelle aussi, respectivement, interférences du second ordre et du quatrième ordre car on les mesure respectivement en faisant des mesures de corrélation du champ (puissance 2 du champ) ou de l'intensité (puissance 4 du champ). Les interférences à un photon correspondent à ce qui est mesuré avec $g^{(1)}(\tau)$, par exemple à l'aide d'un interféromètre de Michelson, en mesurant l'intensité en sortie de l'interféromètre qui dépend du retard introduit entre les deux bras. Pour comprendre la nature des interférences à deux photons, il peut être utile de s'intéresser à des travaux plus anciens comme [Magyar & Mandel 1963 ; Pfleegor & Mandel 1967] dans lesquels des franges d'interférences sont observées de manière astucieuse entre deux faisceaux parfaitement indépendants, sans relation de phase fixe.

Dans le travail de 1963, le deuxième paragraphe liste les conditions d'observation des franges. En particulier, si l'on observe la somme des deux faisceaux sur un temps plus court que le temps de cohérence des deux faisceaux, on observera des franges. Cela semble logique du fait que la relation de phase entre les champs provenant de chacune des sources est maintenue pendant un temps caractéristique qui est le temps de cohérence des sources — on pourrait parler de la durée typique d'un train d'onde. Les franges d'interférences sont donc observées en éclairant brièvement une

plaque photographique pendant un temps plus court que le temps de cohérence.

Dans le travail de 1967, les lasers sont très fortement atténués. Il est alors exclu de mesurer directement les franges puisqu'il faudrait intégrer moins longtemps que le temps de cohérence. La figure 4.1 montre le schéma du montage expérimental ainsi que la séparatrice spécialement conçue pour cette expérience. L'idée est de mesurer des anticorrélations liées à l'apparition des franges d'interférences. Les deux faisceaux sont superposés avec un angle θ, formant potentiellement une figure d'interférences sous la forme de franges dont la période est $l = \lambda/\theta$. Cette figure d'interférences est formée sur une séparatrice constituée de miroirs juxtaposés alternant périodiquement les chemins vers l'un ou l'autre détecteur avec une période L. Lorsque la période l des franges est égale à la période L de la séparatrice, on observera donc un maximum d'anticorrélation entre les deux détecteurs, ce qui signifie que le taux de coïncidences entre les deux détecteurs est plus faible en présence d'interférences.

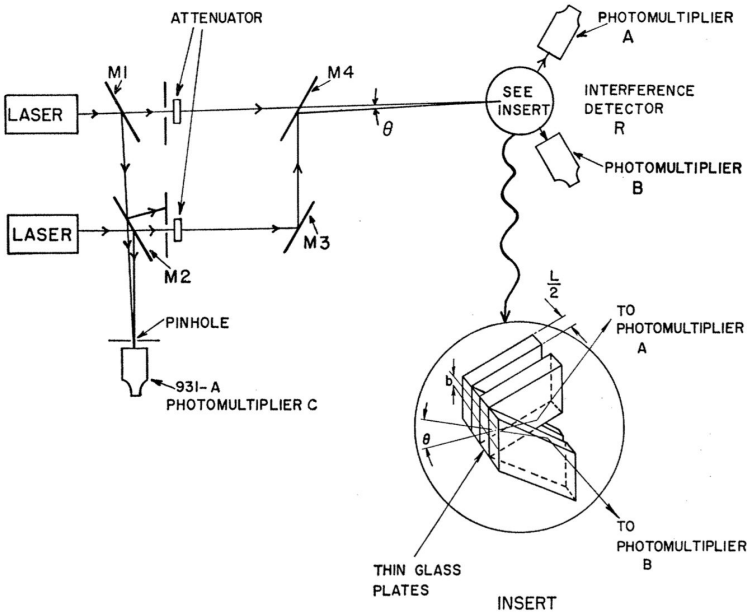


FIGURE 4.1 — Schéma du montage expérimental de Pfleegor et Mandel de 1967, reproduite de [PFLEEGOR & MANDEL 1967, figure 1, p. 1085].

Ces deux expériences permettent donc d'avoir une idée classique des interférences à deux photons, où les interférences sont clairement conceptualisées sous la forme d'une figure d'interférences, changeant au gré de la relation de phase fluctuante entre les deux sources. On retiendra deux idées importantes vis-à-vis du travail de cette thèse : les interférences à deux photons ne sont directement visibles que si l'on intègre sur un temps plus court que le temps de cohérence, et une manière de les voir de manière plus quantitative est d'effectuer des mesures de corrélation.

4.1.2 Principes généraux

Commençons par considérer le cas le plus général d'interférences à deux photons [Mandel 1999, cf. § III, p. S275–S276], qui correspond à la situation représentée sur la figure 4.2. S_A et S_B sont les sources et D_1 et D_2 les détecteurs situés respectivement en $\vec{r}_1$ et $\vec{r}_2$.

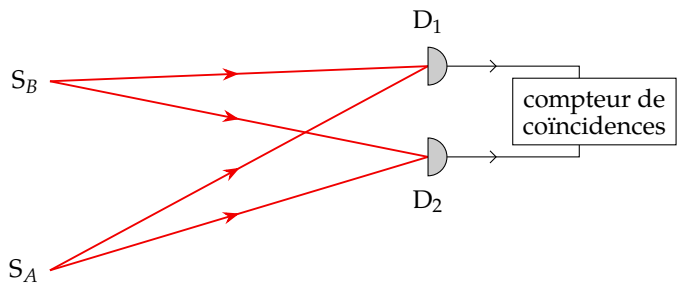


Figure 4.2 — Schéma de principe des interférences à deux photons dans le cas général. S_A et S_B sont les sources et D_1 et D_2 les détecteurs.

La probabilité de détection jointe, c'est-à-dire la probabilité de détecter une coïncidence sur les détecteurs, s'écrit :

$$P_2(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \propto \left\langle E^{(-)}(\vec{r}_1)E^{(-)}(\vec{r}_2)E^{(+)}(\vec{r}_2)E^{(+)}(\vec{r}_1)\right\rangle \tag{4.1.1}$$

Si on ne considère qu'un seul mode du champ au niveau des détecteurs, il vient :

$$E^{(+)}(\vec{r}_1) = f_A\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{A1}}\,a_A + f_B\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{B1}}\,a_B \tag{4.1.2a}$$

$$E^{(+)}(\vec{r}_2) = f_A\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{A2}}\,a_A + f_B\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\phi_{B2}}\,a_B \tag{4.1.2b}$$

où f_A et f_B sont des paramètres complexes, a_A et a_B sont les opérateurs annihilation au niveau de chacune des sources, et ϕ_{A1} est la phase accumulée par le champ lors de sa propagation de S_A à D_1 — de même pour ϕ_{A2}, ϕ_{B1} et ϕ_{B2}.

En réinjectant ces expressions dans (4.1.1), en définissant l'opérateur nombre de photons $n = a^\dagger a$, et sachant que a_A et a_B commutent puisque les sources sont indépendantes, on obtient :

$$\begin{aligned}
P_2(\vec{r}_1,\vec{r}_2) \propto \Big[&|f_A|^4\langle :n_A^2:\rangle + |f_B|^4\langle :n_B^2:\rangle \\
&+ 2|f_A|^2|f_B|^2\langle n_A\rangle\langle n_B\rangle\,(1+\cos(\phi_{B2}-\phi_{A2}+\phi_{A1}-\phi_{B1})) \\
&\quad + f_A^{*2}f_B^2\langle a_A^{\dagger 2}a_B^2\rangle\,\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\phi_{B2}-\phi_{A2}+\phi_{B1}-\phi_{A1})} + \text{c.c.} \\
&+ |f_A|^2 f_A^* f_B\langle a_A^{\dagger 2}a_A a_B\rangle\left(\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\phi_{B1}-\phi_{A1})} + \mathrm{e}^{\mathrm{i}(\phi_{B2}-\phi_{A2})}\right) + \text{c.c.} \\
&\quad + |f_B|^2 f_B^* f_A\langle a_B^{\dagger 2}a_B a_A\rangle\left(\mathrm{e}^{\mathrm{i}(\phi_{A1}-\phi_{B1})} + \mathrm{e}^{\mathrm{i}(\phi_{A2}-\phi_{B2})}\right) + \text{c.c.}\Big]
\end{aligned} \tag{4.1.3}$$

où $\langle : n^r : \rangle$ est le moment d'ordre r de n, avec les opérateurs création et annihilation dans l'ordre normal*. Par exemple, $\langle : n^2 : \rangle = \langle a^\dagger a^\dagger a a \rangle$.

En considérant des états à un seul photon émis par S_A et par S_B, les termes suivants sont nuls :

$$\begin{aligned} \langle : n_A^2 : \rangle = \langle n_A(n_A - 1) \rangle = 0, \qquad \langle : n_B^2 : \rangle = \langle n_B(n_B - 1) \rangle = 0, \\ \langle a_A^{\dagger 2} a_B^2 \rangle = 0, \qquad \langle a_A^{\dagger 2} a_A a_B \rangle = 0, \qquad \langle a_B^{\dagger 2} a_B a_A \rangle = 0 \end{aligned} \tag{4.1.4}$$

Et la probabilité de détection d'une coïncidence se réduit à :

$$P_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \propto |f_A|^2 |f_B|^2 \left(1 + \cos(\phi_{B2} - \phi_{A2} + \phi_{A1} - \phi_{B1})\right) \tag{4.1.5}$$

Cette expression n'est valable que pour des états à un photon, dans le cas général où les phases ϕ_{A1}, ϕ_{A2}, ϕ_{B1} et ϕ_{B2} dépendent de la configuration géométrique de la figure 4.2.

Remarquons enfin que ce calcul ne prend pas en compte la séparation temporelle entre les deux photons, tout comme il ne considère que des photons indiscernables, la visibilité des interférences étant ici de 100%. Dans le cas où les modes provenant de chacune des sources ne sont pas parfaitement superposés, un facteur de visibilité V_0 apparaît devant le cosinus†, tel que :

$$P_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \propto |f_A|^2 |f_B|^2 \left(1 + V_0 \cdot \cos(\phi_{B2} - \phi_{A2} + \phi_{A1} - \phi_{B1})\right) \tag{4.1.6}$$

4.1.3 Interférences à deux photons sur une séparatrice

Plus concrètement, pour observer ces interférences, une solution simple est de combiner la lumière en provenance de ces deux sources en l'envoyant sur chacune des entrées d'une séparatrice, à la manière de l'expérience historique de Hong, Ou et Mandel [Hong *et al.* 1987], comme représenté sur la figure 4.3.

---

* L'ordre normal est lié au processus de photodétection (cf. paragraphe 3.3.5, p. 94). Voir aussi [Mandel & Wolf 1995, cf. § 12.2, p. 573–579], pour l'ordre normal des opérateurs d'échelle dans les fonctions de corrélation, lié au processus de photodétection, et [*ibid.*, cf. § 12.10.3, p. 626], pour plus de détails sur les moments d'ordre r et leur développement en termes d'opérateurs nombre $\hat{n}$.

† [Loudon 2000, cf. § 6.8, p. 260–265], pour la justification du paramètre V_0 qui, dans la référence, s'identifie d'une certaine manière à $|J|^2$, le module carré de l'intégrale de recouvrement temporel entre les deux modes. On pourra également consulter [Fearn & Loudon 1989] qui suit les mêmes raisonnements. Les deux références considèrent un cas plus précis de photons uniques entrant de part et d'autre d'une séparatrice, ce que nous allons voir au paragraphe suivant, et s'occupent plutôt du recouvrement spectral et temporel, qui nous concerneront plutôt au paragraphe 4.1.4. V_0 a ici vocation à être un paramètre phénoménologique prenant en compte les imperfections du montage qui dégradent la visibilité des interférences.

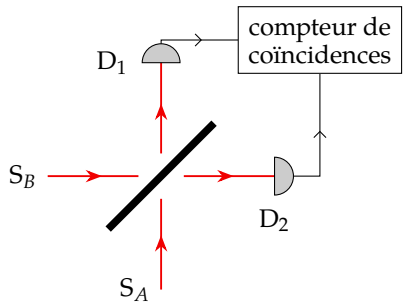


FIGURE 4.3 — Schéma d'une séparatrice combinant deux sources indépendantes.

Les relations entre la sortie et l'entrée de la séparatrice s'écrivent* :

$$\begin{pmatrix} E^{(+)}(\vec{r}_1) \\ E^{(+)}(\vec{r}_2) \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t & \mathrm{i}r \\ \mathrm{i}r & t \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} f_A a_A \\ f_B a_B \end{pmatrix} \tag{4.1.7}$$

où t et r sont les coefficients de transmission et de réflexion en amplitude de la séparatrice. On a également omis les termes de phase dûs à la propagation des sources vers la séparatrice et de la séparatrice vers les détecteurs afin d'alléger les écritures.

En calculant le produit ci-dessus, on obtient :

$$\begin{aligned} E^{(+)}(\vec{r}_1) &= t f_A a_A + \mathrm{i}r f_B a_B \\ E^{(+)}(\vec{r}_2) &= \mathrm{i}r f_A a_A + t f_B a_B \end{aligned} \tag{4.1.8}$$

En comparant ces expressions avec (4.1.2a) et (4.1.2b), on peut identifier les phases associées :

$$\begin{aligned} \phi_{A1} &= 0 \quad & \phi_{B1} &= \frac{\pi}{2} \\ \phi_{A2} &= \frac{\pi}{2} \quad & \phi_{B2} &= 0 \end{aligned} \tag{4.1.9}$$

Si on reprend l'expression (4.1.5), valable pour des états à un photon et une visibilité des interférences de 100%, le taux de coïncidences vaut alors :

$$P_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2) \propto |f_A|^2 |f_B|^2 \left(1 + \cos(\pi)\right) = 0 \tag{4.1.10}$$

En envoyant deux photons sur les deux entrées de la séparatrice, la probabilité d'observer des coïncidences à la sortie est donc nulle. Cela ne vaut que pour un mode unique du champ, autrement dit pour des photons parfaitement indiscernables. Concrètement, cela signifie que deux photons indiscernables arrivant simultanément

* La matrice de diffusion reliant les états d'entrée aux états de sortie de la séparatrice est a priori plus générale que celle écrite ici. On pourra consulter à cet effet [MANDEL & WOLF 1995, cf. § 12.12, p. 639–646], où les relations 12.12–1 permettent de vérifier la validité de la matrice choisie ici. On pourra aussi consulter [OU *et al.* 1987].

sur les deux entrées d'une lame séparatrice repartiront tous les deux vers l'une des sorties, les cas où chacun part d'un côté étant exclus. Pour désigner ce phénomène d'agrégation des photons, on parle de *coalescence* des photons.

Ce résultat peut être obtenu de manière plus directe. En effet, la matrice de diffusion vaut pour les opérateurs annihilation :

$$\begin{pmatrix} a_1 \\ a_2 \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t & \mathrm{i}r \\ \mathrm{i}r & t \end{bmatrix} \cdot \begin{pmatrix} a_A \\ a_B \end{pmatrix} \tag{4.1.11}$$

ce qui mène aux relations entre opérateurs création :

$$a_A^\dagger = t a_1^\dagger + \mathrm{i}r a_2^\dagger \tag{4.1.12a}$$

$$a_B^\dagger = \mathrm{i}r a_1^\dagger + t a_2^\dagger \tag{4.1.12b}$$

Si l'on considère par exemple l'état $|1\rangle_A|0\rangle_B$, qui correspond à un seul photon provenant de S_A (situation de l'interféromètre de HBT), il vient :

$$\begin{aligned} |1\rangle_A|0\rangle_B &= a_A^\dagger|0\rangle_A|0\rangle_B \\ &= (t a_1^\dagger + \mathrm{i}r a_2^\dagger)|0\rangle_1|0\rangle_2 \\ &= t|1\rangle_1|0\rangle_2 + \mathrm{i}r|0\rangle_1|1\rangle_2 \end{aligned} \tag{4.1.13}$$

On retrouve donc le comportement de dégroupement de photons observé dans un interféromètre de HBT puisque la probabilité de mesurer $|1\rangle_1|1\rangle_2$, c'est-à-dire de mesurer une coïncidence entre D_1 et D_2, est nulle.

Si l'on considère à présent l'état $|1\rangle_A|1\rangle_B$, qui correspond à un photon sur chacune des entrées de la séparatrice (situation de l'interféromètre de HOM), on obtient :

$$|1\rangle_A|1\rangle_B = \mathrm{i}tr\sqrt{2}|2\rangle_1|0\rangle_2 + t^2|1\rangle_1|1\rangle_2 - r^2|1\rangle_1|1\rangle_2 + \mathrm{i}rt\sqrt{2}|0\rangle_1|2\rangle_2 \tag{4.1.14}$$

Si la séparatrice est équilibrée, c'est-à-dire que $r = t = \frac{1}{\sqrt{2}}$, alors les amplitudes des termes en $|1\rangle_1|1\rangle_2$ se compensent et on obtient :

$$|1\rangle_A|1\rangle_B = \frac{\mathrm{i}}{\sqrt{2}}|2\rangle_1|0\rangle_2 + \frac{\mathrm{i}}{\sqrt{2}}|0\rangle_1|2\rangle_2 \tag{4.1.15}$$

Autrement dit, la probabilité de détecter une coïncidence en sortie de la séparatrice vaut 0, en accord avec le résultat (4.1.10).

En conclusion, nous avons montré que pour des photons indiscernables arrivant sur les deux entrées d'une lame séparatrice, le taux de coïncidences entre les sorties est nul, ce que l'on appelle le phénomène de coalescence. Cet effet est utilisé pour quantifier l'indiscernabilité des photons, comme dans l'expérience historique de Hong, Ou et Mandel : lorsqu'aucune coïncidence n'est détectée alors que l'on envoie des photons sur les deux entrées de la séparatrice, cela correspond à une parfaite indiscernabilité des photons ; si des coïncidences sont détectées, alors les photons sont alors partiellement discernables, dans la limite d'un taux de coïncidence égal au produit des intensités au niveau des deux détecteurs, auquel cas l'indiscernabilité est nulle.

4.1.4 Prise en compte de la séparation temporelle

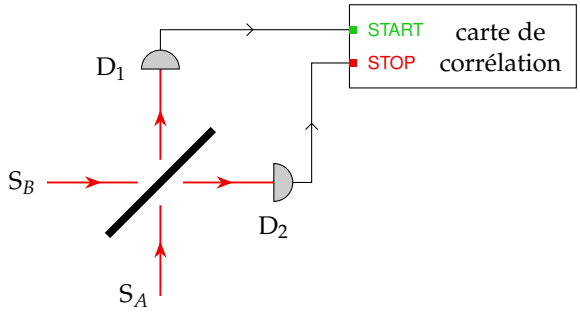


FIGURE 4.4 — Schéma d'une séparatrice combinant deux sources indépendantes et mesure de corrélation de l'intensité.

Nous nous intéressons maintenant à la fonction de corrélation du second ordre, dans la situation de la figure 4.4, mesurée en sortie des détecteurs D_1 et D_2, que nous noterons $G^{(2X)}$ et qui se définit par :

$$G^{(2X)}(\tau) = \left\langle E_1^{(-)}(t)\, E_2^{(-)}(t+\tau)\, E_2^{(+)}(t+\tau)\, E_1^{(+)}(t) \right\rangle \tag{4.1.16}$$

où $E_1 = E(\vec{r}_1)$ et $E_2 = E(\vec{r}_2)$ sont les champs au niveau des détecteurs D_1 et D_2.

Définissons également la version normalisée $g^{(2X)}$ de cette fonction de corrélation :

$$g^{(2X)}(\tau) = \frac{\left\langle E_1^{(-)}(t)\, E_2^{(-)}(t+\tau)\, E_2^{(+)}(t+\tau)\, E_1^{(+)}(t) \right\rangle}{\left\langle E_1^{(-)}(t)\, E_1^{(+)}(t) \right\rangle \left\langle E_2^{(-)}(t)\, E_2^{(+)}(t) \right\rangle} \tag{4.1.17}$$

D'après les considérations du paragraphe précédent, E_1 et E_2 s'écrivent :

$$\begin{aligned} E_1^{(+)}(t) &= tE_A^{(+)}(t) + \mathrm{i}rE_B^{(+)}(t) \\ E_2^{(+)}(t) &= \mathrm{i}rE_A^{(+)}(t) + tE_B^{(+)}(t) \end{aligned} \tag{4.1.18}$$

En injectant ces expressions dans (4.1.17), on peut montrer* que $g^{(2X)}(\tau)$ s'écrit :

$$\begin{aligned} g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{D} \cdot \Big[&(t^4 + r^4) I_A I_B + r^2 t^2 \left(G_A^{(2)}(\tau) + G_B^{(2)}(\tau) \right) \\ &- \underbrace{r^2 t^2 \left(G_A^{(1)}(\tau) G_B^{(1)^*}(\tau) + G_B^{(1)}(\tau) G_A^{(1)^*}(\tau) \right)}_{\text{terme d'interférences}} \Big] \end{aligned} \tag{4.1.19}$$

où $D = (t^2 I_A + r^2 I_B)(r^2 I_A + t^2 I_B)$, avec $I_A = \langle E_A^{(-)}\, E_A^{(+)} \rangle$ l'intensité au niveau de S_A, de même pour S_B. Les fonctions de corrélation $G^{(1)}(\tau)$ et $G^{(2)}(\tau)$ suivent leur

* Le développement qui mène à ce résultat est détaillé dans [LETTOW 2010, cf. § 2.5, p. 25–29] et il est très similaire à celui effectué au paragraphe 4.2.3 (p. 123).

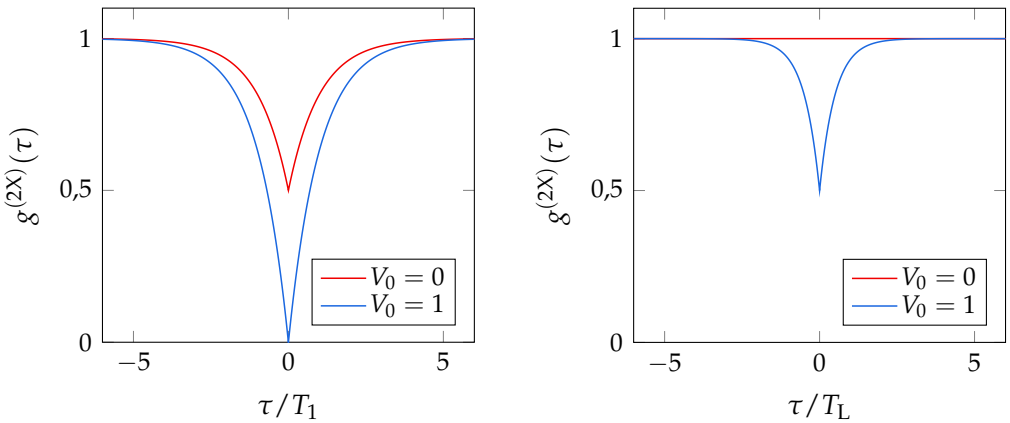
définition (3.1.6) et (3.1.7) (p. 76). Le dernier terme croise les contributions des sources S_A et S_B : il s'agit du terme d'interférences à deux photons.

Si les deux sources S_A et S_B sont identiques et que $r = t = 1/\sqrt{2}$, on obtient :

$$g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{2}g^{(2)}(\tau) + \frac{1}{2}\left[1 - V_0|g^{(1)}(\tau)|^2\right] \tag{4.1.20}$$

où V_0 est un facteur de visibilité phénoménologique compris entre 0 et 1, prenant en compte les imperfections du montage menant à une perte de visibilité des interférences.

Si l'on considère $g^{(2X)}(\tau)$ dans le cadre de deux boîtes quantiques identiques comme sources, $g^{(2)}(\tau)$ est caractéristique d'une source de photons uniques, qui prend donc une valeur nulle à $\tau = 0$, et $g^{(1)}(0) = 1$, comme c'est le cas quelle que soit la source considérée. Ainsi, dans le cas où $V_0 = 1$ (100% de visibilité des interférences), on obtient $g^{(2X)}(0) = 0$, ce qui signifie que $g^{(2X)}(\tau)$ présente des anticorrélations à $\tau = 0$. De plus, aux temps τ longs, $\lim_{+\infty} g^{(2X)}(\tau) = 1$, donc les anticorrélations apparaissent sur la courbe comme un creux centré sur $\tau = 0$.



(a) Allure de $g^{(2X)}(\tau)$ pour des sources qui sont deux boîtes quantiques identiques, à la limite radiative, pour 0% ($V_0 = 0$) et 100% ($V_0 = 1$) de visibilité des interférences.

(b) Allure de $g^{(2X)}(\tau)$ pour deux sources poissonniennes avec un profil spectral lorentzien de largeur finie $1/(\pi T_L)$, pour 0% ($V_0 = 0$) et 100% ($V_0 = 1$) de visibilité des interférences. Il s'agira par exemple d'une source laser.

FIGURE 4.5 — $g^{(2X)}(\tau)$ pour différentes situations et différents types de sources.

La figure 4.5a montre un exemple de $g^{(2X)}(\tau)$ pour des sources correspondant à deux boîtes quantiques idéales, identiques, toutes les deux à la limite radiative, excitées de manière non-résonnante. Les deux courbes correspondant à $V_0 = 1$ et $V_0 = 0$ décrivent des variations de $g^{(2X)}(\tau)$ lorsque les interférences sont visibles à 100% et lorsqu'elles ne le sont pas, par exemple si les deux sources ont des polarisations orthogonales. On peut voir que même lorsque les interférences entre les deux sources disparaissent, leur caractère de source de photons uniques maintient le creux à $g^{(2X)}(0) = 0{,}5$.

En revanche, la figure 4.5b montre $g^{(2X)}(\tau)$ pour deux sources de statistique poissonnienne, comme deux lasers, mais de largeur spectrale finie $1/(\pi T_L)$ (où T_L est le temps de cohérence du laser). Cette fois, avec une visibilité nulle des interférences, $g^{(2X)}(\tau)$ reste parfaitement plat et égal à 1. Avec 100% de visibilité, on obtient un creux $g^{(2X)}(0) = 0{,}5$ — ce résultat se retrouve classiquement*.

Ainsi, si l'on considère que l'indiscernabilité est directement reliée à la valeur de $g^{(2X)}(0)$, disposer d'une source de photons uniques est indispensable pour observer 100% d'indiscernabilité à $\tau = 0$. Avec une source de statistique poissonnienne, l'indiscernabilité culmine à 50%.

4.2 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel avec un émetteur unique

4.2.1 Interféromètre de Hong–Ou–Mandel

L'interféromètre de Hong–Ou–Mandel est décrit dans l'article fondateur de 1987 sur les expériences d'interférences à deux photons [Hong *et al.* 1987], dans lequel les interférences sont observées entre deux faisceaux générés par diffusion paramétrique, ce qui a permis de mesurer très précisément le temps de cohérence en modifiant la longueur des bras. Ce montage peut donc se résumer à une simple séparatrice sur les entrées de laquelle on envoie les photons que l'on souhaite caractériser, les deux détecteurs aux sorties de la séparatrice étant reliés à une carte de corrélation. Toutefois, deux sources indépendantes peuvent impliquer de nombreuses complications expérimentales : deux voies de détection comportant chacune les optiques de collection et leurs positionneurs, éventuellement deux cryostats différents et des échantillons ayant des boîtes émettant à la même énergie. Il est donc beaucoup plus simple de n'utiliser qu'une seule source que l'on sépare en deux avec une séparatrice puis que l'on recombine sur une deuxième séparatrice, après laquelle on mesure des interférences. C'est le principe de nombreux interféromètres usuels comme l'interféromètre de Mach–Zehnder que nous utiliserons (cf. figure 4.6). Le faisceau issu de la source est donc séparé à l'aide de la première séparatrice notée A, puis se propage dans les deux bras de l'interféromètre avant d'être recombiné sur la seconde séparatrice notée B. Les deux faisceaux sortants sont mesurés par les détecteurs D_1 et D_2 qui sont reliés à une carte de corrélation permettant de mesurer les écarts temporels t_1 et t_2 entre les détections sur chacun des détecteurs.

---

* Classiquement, dans le cas d'une séparatrice équilibrée, les intensités au niveau des deux détecteurs s'écrivent $I_0(1 \pm \cos\phi)$, où $I_0 = I_A = I_B$ et ϕ est le déphasage entre S_A et S_B, qui fluctue en fonction du temps étant donné que les deux sources sont indépendantes. Le signal de détection joint, moyenné sur l'ensemble des détections jointes, s'écrit $\langle I_0^2(1-\cos^2\phi)\rangle_\phi = I_0^2/2$. En l'absence d'interférences, on obtiendra I_0^2. Cela corrobore la valeur de $g^{(2X)}(0)$ pour $V_0 = 1$ et $V_0 = 0$.

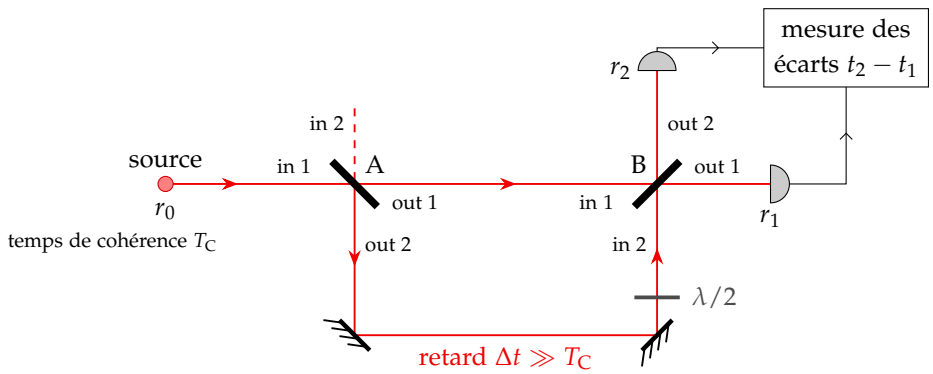


FIGURE 4.6 — Schéma de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel et définition des notations.

Cependant, une source unique ne peut a priori pas constituer deux sources indépendantes telles que celles que nous avons considéré dans les paragraphes 4.1.3 et 4.1.4. L'hypothèse des sources indépendantes est nécessaire du fait des moyennes statistiques présentes dans les expressions des corrélateurs. Prenons par exemple $\langle : I(t)\, I(t+\tau) : \rangle$ où I représente l'intensité : pour pouvoir mesurer la valeur moyenne correctement, il faut que chaque mesure de $: I(t)\, I(t+\tau) :$ soit indépendante de la précédente. Lorsque les sources sont liées par une relation de phase fixe comme le sont les champs des deux bras à la sortie d'un interféromètre équilibré, les champs incidents sur la seconde séparatrice ne sont pas indépendants et chaque mesure de l'intensité effectuée à la sortie dépend de la précédente.

Il est possible de rendre ces deux champs indépendants avec une source unique et l'interféromètre de Mach–Zehnder en déséquilibrant fortement l'interféromètre, c'est-à-dire en allongeant l'un des bras de manière à ce que le retard Δt entre les deux bras de l'interféromètre soit plus long que le temps de cohérence T_C de la source [LEBRETON *et al.* 2013]. Dans ce cas, les champs incidents de part et d'autre de la séparatrice de sortie B sont indépendants pour les écarts temporels τ petits devant Δt et les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ seront correctes. Nous appellerons donc interféromètre de Hong–Ou–Mandel l'interféromètre représenté sur la figure 4.6, dans lequel il est essentiel d'avoir un retard entre les deux bras tel que $\Delta t \gg T_C$.

4.2.2 Propagation du champ source dans l'interféromètre

Pour évaluer le résultat d'une mesure de $g^{(2X)}(\tau)$ à l'aide d'un interféromètre de Hong–Ou–Mandel tel que celui de la figure 4.6, intéressons-nous à l'expression du champ mesuré par chacun des détecteurs en fonction du champ au niveau de la source.

Les notations utilisées ici seront basées sur celles de la figure 4.6. Ainsi, la source est positionnée à r_0, les détecteurs D_1 et D_2 positionnés à r_1 et r_2 respectivement. La

première séparatrice notée A possède des coefficients de transmission et de réflexion t_{A} et r_A (en amplitude), et de même t_{B} et r_B pour la deuxième séparatrice B. Les ports d'entrée sont notés in 1 et in 2, les ports de sortie out 1 et out 2, et leur position sera notée par exemple $r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{in}\,2}$ pour le port d'entrée n°2 de la séparatrice B. Les temps de propagation entre les différents éléments du montage sont notés selon la forme t_{AB}, par exemple, qui correspond au temps de propagation sur le bras court entre les deux séparatrices A et B.

De plus, nous prendrons en compte la polarisation relative de la lumière dans les deux bras, qui peut être contrôlée à l'aide de la lame demi-onde présente sur le bras long. La polarisation du champ du bras court sera prise suivant $\vec{e}_x$, et la polarisation du bras long aura subi une rotation de ϕ et aura donc une composante $\cos\phi\,\vec{e}_x$ et une autre $\sin\phi\,\vec{e}_y$. Le traitement de la polarisation est très similaire à ce qui est fait dans [Gerber, Rotter, Hennrich *et al.* 2009, cf. § 3, p. 6–8].

En utilisant les relations entrée-sortie des séparatrices, détaillées au paragraphe 4.1.3 (p. 115), et les temps de propagation sur les différentes sections du montage, on établit les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\vec{E}^{(+)}(r_1,t_1) &= \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{out}\,1},t_1-t_{\mathrm{B}1})\\ \vec{E}^{(+)}(r_2,t_2) &= \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{out}\,2},t_2-t_{\mathrm{B}2})\end{aligned} \tag{4.2.1a}$$

$$\begin{pmatrix}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{out}\,1},t)\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{out}\,2},t)\end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t_{\mathrm{B}} & \mathrm{i}r_{\mathrm{B}}\\ \mathrm{i}r_{\mathrm{B}} & t_{\mathrm{B}}\end{bmatrix}\begin{pmatrix}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{in}\,1},t)\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{in}\,2},t)\end{pmatrix} \tag{4.2.1b}$$

$$\begin{aligned}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{in}\,1},t) &= E^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{out}\,1},t-t_{\mathrm{AB}})\vec{e}_x\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{B}}_{\mathrm{in}\,2},t) &= E^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{out}\,2},t-t_{\mathrm{AB}}-\Delta t)(\cos\phi\,\vec{e}_x+\sin\phi\,\vec{e}_y)\end{aligned} \tag{4.2.1c}$$

$$\begin{pmatrix}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{out}\,1},t)\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{out}\,2},t)\end{pmatrix} = \begin{bmatrix} t_{\mathrm{A}} & \mathrm{i}r_{\mathrm{A}}\\ \mathrm{i}r_{\mathrm{A}} & t_{\mathrm{A}}\end{bmatrix}\begin{pmatrix}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{in}\,1},t)\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{in}\,2},t)\end{pmatrix} \tag{4.2.1d}$$

$$\begin{aligned}\vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{in}\,1},t) &= E^{(+)}(r_0,t-t_{0\mathrm{A}})\vec{e}_x\\ \vec{E}^{(+)}(r^{\mathrm{A}}_{\mathrm{in}\,2},t) &= \vec{0}\end{aligned} \tag{4.2.1e}$$

Il vient alors :

$$\vec{E}^{(+)}(r_1,t_1) = t_{\mathrm{A}}t_{\mathrm{B}}E^{(+)}(r_0,t)\vec{e}_x - r_{\mathrm{A}}r_{\mathrm{B}}E^{(+)}(r_0,t-\Delta t)(\cos\phi\,\vec{e}_x+\sin\phi\,\vec{e}_y) \tag{4.2.2a}$$

$$\vec{E}^{(+)}(r_2,t_2) = \mathrm{i}t_{\mathrm{A}}r_{\mathrm{B}}E^{(+)}(r_0,t+\tau)\vec{e}_x + \mathrm{i}r_{\mathrm{A}}t_{\mathrm{B}}E^{(+)}(r_0,t+\tau-\Delta t)(\cos\phi\,\vec{e}_x+\sin\phi\,\vec{e}_y) \tag{4.2.2b}$$

en choisissant les paramètres temporels tels que :

$$t = t_1 - t_{\mathrm{B}1} - t_{\mathrm{AB}} - t_{0\mathrm{A}} \tag{4.2.3a}$$

$$t+\tau = t_2 - t_{\mathrm{B}2} - t_{\mathrm{AB}} - t_{0\mathrm{A}} \tag{4.2.3b}$$

4.2.3 Corrélations en intensité — développement

On cherche à établir le résultat de la mesure de corrélation en intensité, autrement dit l'expression de $G^{(2X)}(\tau)$ telle que définie par (4.1.16). En redéfinissant t et τ dans les expressions (4.2.3), et avec l'hypothèse d'un processus stationnaire, on montre que les deux expressions suivantes sont équivalentes :

$$\begin{aligned} G^{(2X)}(\tau) &= \left\langle E^{(-)}(r_1,t_1)\, E^{(-)}(r_2,t_2)\, E^{(+)}(r_2,t_2)\, E^{(+)}(r_1,t_1) \right\rangle \\ &= \left\langle E^{(-)}(r_1,t)\, E^{(-)}(r_2,t+\tau)\, E^{(+)}(r_2,t+\tau)\, E^{(+)}(r_1,t) \right\rangle \end{aligned} \tag{4.2.4}$$

où $\tau = t_2 - t_1 + t_{\mathrm{B1}} - t_{\mathrm{B2}}$.

De plus, en prenant en compte la polarisation, il faut sommer les combinaisons de modes de polarisation sur chacun des détecteurs, soit :

$$G^{(2X)}(\tau) = \sum_{i,j\in\{x,y\}} \left\langle E_i^{(-)}(r_1,t)\, E_j^{(-)}(r_2,t+\tau)\, E_j^{(+)}(r_2,t+\tau)\, E_i^{(+)}(r_1,t) \right\rangle \tag{4.2.5}$$

où E_x est la composante du champ suivant $\vec{e}_x$ et E_y la composante suivant $\vec{e}_y$.

Développement : En réinjectant dans le corrélateur ci-dessus les expressions (4.2.2), on peut développer $G^{(2X)}(\tau)$ en 16 termes, dont certains viennent de pair avec leur complexe conjugué. Étant donné que l'on exprime tous les champs au niveau de la source, on abandonne l'écriture de la position. La figure 4.7 donne le résultat du développement de $G^{(2X)}(\tau)$.

Effet de la polarisation : Tout d'abord on rappellera que ϕ est l'angle entre la polarisation des champs issus de chacun des bras. Lorsque $\phi = 0$, les champs issus des deux bras ont la même polarisation ; lorsque $\phi = \frac{\pi}{2}$ rad, ces champs ont une polarisation orthogonale.

On peut ainsi séparer deux familles de termes dans le développement précédent. D'une part, les termes (1) à (4) ne sont pas affectés par le croisement de polarisation. On pourra noter que chaque détecteur voit les parties positives et négatives du même champ, qui s'est propagé dans un seul bras ; il est donc logique que ces termes ne soient pas affectés par une modification de la polarisation relative entre les deux bras. Nous les appellerons *termes statistiques*.

D'autre part, le reste des termes, c'est-à-dire (α), (β) et les termes de (I) à (IV) et leurs complexes conjugués, sont tous annulés par un croisement de la polarisation entre les deux bras. Cela est le signe qu'ils sont issus d'interférences entre les modes issus des deux bras, et nous les appellerons donc *termes d'interférences*.

Termes statistiques : Les termes numérotés de (1) à (4) ont une structure symétrique n'associant que deux temps différents. Les termes (1) et (4) correspondent tous les

$$
\begin{aligned}
&|t_A|^4|t_B|^2|r_B|^2 \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t) \right\rangle && (1)\\
&+|t_A|^2|t_B|^4|r_A|^2 \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t) \right\rangle && (2)\\
&+|t_A|^2|r_A|^2|r_B|^4 \left\langle E^{(-)}(t-\Delta t)\, E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (3)\\
&+|t_B|^2|r_A|^4|r_B|^2 \left\langle E^{(-)}(t-\Delta t)\, E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (4)\\
+\Big[&|t_A|^2|t_B|^2 t_A^* t_B r_A r_B^* \cos\phi \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t) \right\rangle && (\alpha)\\
&+|r_A|^2|r_B|^2 t_A^* t_B r_A r_B^* \cos\phi \left\langle E^{(-)}(t-\Delta t)\, E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (\beta)\\
&-|t_A|^2|r_B|^2 t_A^* t_B^* r_A r_B \cos\phi \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (\mathrm{I})\\
&-|t_B|^2|r_B|^2 t_A^{*2} r_A^2 \cos^2\phi \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (\mathrm{II})\\
&-|t_A|^2|r_A|^2 t_B^{*2} r_B^2 \cos^2\phi \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t+\tau) \quad E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (\mathrm{III})\\
&-|t_B|^2|r_A|^2 t_A^* t_B^* r_A r_B \cos\phi \left\langle E^{(-)}(t) \quad E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t) \right\rangle && (\mathrm{IV})\\
&+\text{c.c.}\Big]
\end{aligned}
$$

FIGURE 4.7 — Développement de $G^{(2X)}(\tau)$ en prenant en compte la propagation dans l'interféromètre de HOM.

deux à $G^{(2)}(\tau)$ — décalé de Δt pour (4), mais le processus étant stationnaire, ce terme est équivalent à (1). De même, (2) correspond à $G^{(2)}(\tau - \Delta t)$ et (3) à $G^{(2)}(\tau + \Delta t)$.

On comprend donc pourquoi ces termes sont dits « statistiques » : ils reviennent à des mesures de $G^{(2)}(\tau)$ qui caractérise la statistique des photons émis par la source.

Termes d'interférences : Les termes d'interférences ne sont pas symétriques et font apparaître trois temps différents. Pour traiter ces termes, nous faisons l'hypothèse que le retard introduit par l'interféromètre Δt est très grand devant le temps de cohérence de la source T_C. Dans ce cas, les opérateurs en $t - \Delta t$ et en t sont indépendants et peuvent être isolés dans des moyennes séparées* — il s'agit du même type d'arguments que ceux utilisés pour calculer l'expression (4.1.19) de $g^{(2X)}(\tau)$ dans le cas de sources indépendantes (p. 118).

Les termes (α), (β), (I) et (IV) comportent une structure avec un temps en t et trois temps en $t - \Delta t$ ou inversement. Pour (α), par exemple, on peut isoler le champ en

* Veuillez noter qu'un opérateur d'ordonnancement des temps est implicitement présent dans tous les corrélateurs, puisque les observables sont appliquées dans l'ordre où elles sont mesurées. Cela réunit les opérateurs en t et les opérateurs en $t - \Delta t$.

$t - \Delta t$:

$$\left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \\ = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t)\right\rangle \left\langle E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\right\rangle \quad (4.2.6)$$

Le champ isolé est mesuré de manière indépendante à chaque tirage, et vaudra donc 0 en moyenne. Les termes (α), (β), (I) et (IV) sont donc nuls.

Le terme (II) peut quant à lui être séparé en :

$$\left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t)\right\rangle \\ = \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau)\right\rangle \left\langle E^{(+)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t-\Delta t)\right\rangle \quad (4.2.7)$$

Les deux valeurs moyennes sont nulles pour les mêmes raisons que précédemment : $E^{(-)}(t)E^{(-)}(t+\tau)$ oscille deux fois plus vite que $E^{(-)}(t)$, et sa valeur moyenne sera donc nulle. Ainsi le terme (II) est nul.

Le terme (III) peut également être séparé de la façon suivante :

$$\begin{aligned}\left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\, E^{(+)}(t+\tau)\, E^{(+)}(t-\Delta t)\right\rangle \\ &= \left\langle E^{(-)}(t)\, E^{(+)}(t+\tau)\right\rangle \left\langle E^{(+)}(t-\Delta t)\, E^{(-)}(t+\tau-\Delta t)\right\rangle \\ &= G^{(1)}(\tau)\, G^{(1)^*}(\tau) \\ &= \left|G^{(1)}(\tau)\right|^2 \end{aligned} \quad (4.2.8)$$

Avec son complexe conjugué, ce terme est donc le seul des termes d'interférences à subsister aux effets de moyennage, et il revient au module carré de $G^{(1)}(\tau)$. Nous retrouvons donc le résultat du paragraphe 4.1.4 où les interférences étaient également représentées par un terme en $|G^{(1)}(\tau)|^2$.

Résultat final : On peut écrire la forme finale de $G^{(2X)}(\tau)$:

$$\begin{aligned} G^{(2X)}(\tau) = |t_B|^2|r_B|^2 \left(|t_A|^4 + |r_A|^4\right) G^{(2)}(\tau) \\ +|t_A|^2|t_B|^4|r_A|^2\, G^{(2)}(\tau-\Delta t) \\ +|t_A|^2|t_B|^2|r_B|^4\, G^{(2)}(\tau+\Delta t) \\ -|t_A|^2|r_A|^2 \left(t_B^{*2} r_B^2 + t_B^2 r_B^{*2}\right) \cos^2\phi \left|G^{(1)}(\tau)\right|^2 \end{aligned} \quad (4.2.9)$$

Dans le cas où la polarisation entre les deux bras est orthogonale, seul le dernier terme, lié aux interférences à deux photons, s'annule.

Expression normalisée : Dans ce qui suit, nous considérerons que les coefficients de transmission et de réflexion des séparatrices A et B sont réels, et utiliserons les coefficients en intensité T_A, T_B, R_A et R_B qui sont les carrés des coefficients en amplitude t_A, t_B, r_A et r_B respectivement.

L'expression normalisée de $G^{(2X)}(\tau)$ s'écrit :

$$g^{(2X)}(\tau) = \frac{G^{(2X)}(\tau)}{I_1 I_2} \tag{4.2.10}$$

où I_1 et I_2 sont les intensités au niveau des détecteurs D_1 et D_2.

On utilise les expressions (4.2.2) pour déterminer I_1 et I_2. Ainsi* :

$$I_1 = \left\langle E^{(+)}(r_1, t_1)\, E^{(-)}(r_1, t_1) \right\rangle \tag{4.2.11}$$

$$= T_A T_B I + R_A R_B I - t_A t_B r_A^* r_B^* G^{(1)}(-\Delta t) - t_A^* t_B^* r_A r_B G^{(1)}(\Delta t) \tag{4.2.12}$$

où I est l'intensité de la source.

Si $\Delta t \gg T_C$, $G^{(1)}(\Delta t) = 0$ et les deux derniers termes ci-dessus sont nuls. L'intensité au niveau du détecteur D_1 s'écrit donc :

$$I_1 = (T_A T_B + R_A R_B) I \tag{4.2.13}$$

De même, l'intensité au niveau du détecteur D_2 s'écrit :

$$I_2 = (T_A R_B + R_A T_B) I \tag{4.2.14}$$

On obtient l'expression finale suivante† :

$$\begin{aligned} g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{D}\Big[& T_B R_B (T_A^2 + R_A^2)\, g^{(2)}(\tau) \\ & + T_A R_A T_B^2\, g^{(2)}(\tau - \Delta t) + T_A R_A R_B^2\, g^{(2)}(\tau + \Delta t) \\ & - 2 R_A T_A R_B T_B \cos^2\phi \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2 \Big] \end{aligned} \tag{4.2.15}$$

où $D = R_A T_A (R_B^2 + T_B^2) + R_B T_B (R_A^2 + T_A^2)$ et ϕ est l'angle entre les polarisations issues des deux bras de l'interféromètre.

4.2.4 Corrélations en intensité — interprétation

On généralise le facteur $\cos^2\phi$ lié à la polarisation respective des deux bras que l'on remplace par un facteur de visibilité V_0, qui prend également en compte les

* Pour simplifier, on n'écrit pas les dépendances en polarisation et l'on considère l'amplitude du champ comme un champ scalaire, ce qui ne change rien au résultat ici.

† Cette expression est très similaire à ce qui peut être trouvé dans la littérature [Patel, A. J. Bennett, Cooper *et al.* 2008].

imperfections expérimentales qui dégradent le contraste des franges d'interférences lorsque les polarisations sont parallèles ou au contraire qui rétablissent les interférences lorsque les polarisations sont croisées. Finalement, nous obtenons l'expression suivante pour $g^{(2X)}(\tau)$:

$$\begin{aligned} g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{D}\Big[& T_B R_B (T_A^2 + R_A^2)\, g^{(2)}(\tau) \\ & + T_A R_A T_B^2\, g^{(2)}(\tau - \Delta t) + T_A R_A R_B^2\, g^{(2)}(\tau + \Delta t) \\ & - 2 R_A T_A R_B T_B\, V_0 \left| g^{(1)}(\tau) \right|^2 \Big] \end{aligned} \tag{4.2.16}$$

Ce sera cette expression que nous utiliserons pour calculer les courbes théoriques à confronter aux résultats expérimentaux. À partir de cette expression, on définit $g_{/\!/}^{(2X)}$ et $g_{\perp}^{(2X)}$ qui correspondent à $g^{(2X)}$ dans le cas où la polarisation des deux bras est parallèle et orthogonale, donc où le paramètre de visibilité V_0 est maximal et minimal, respectivement, en fonction de la polarisation.

L'expression (4.2.16) se simplifie si $R_{A,B} = T_{A,B} = 1/2$ et pour $V_0 = 1$ et 0 respectivement pour $g_{/\!/}^{(2X)}$ et $g_{\perp}^{(2X)}$. On a alors :

$$g_{/\!/}^{(2X)}(\tau) = \overbrace{\frac{1}{4} g^{(2)}(\tau + \Delta t)}^{\boxed{\text{B1}}} + \overbrace{\frac{1}{4} g^{(2)}(\tau - \Delta t)}^{\boxed{\text{B2}}} + \overbrace{\frac{1}{2} g^{(2)}(\tau) - \frac{1}{2} |g^{(1)}(\tau)|^2}^{\boxed{\text{A}}} \tag{4.2.17a}$$

$$g_{\perp}^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{4} g^{(2)}(\tau + \Delta t) + \frac{1}{4} g^{(2)}(\tau - \Delta t) + \frac{1}{2} g^{(2)}(\tau) \tag{4.2.17b}$$

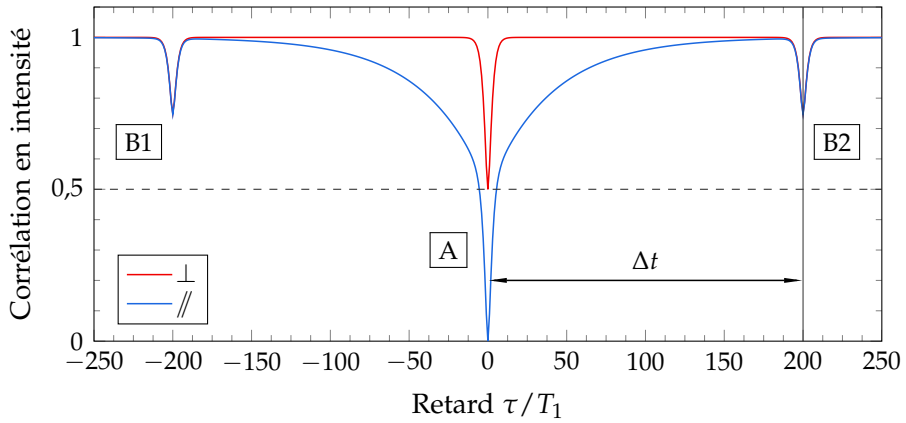


FIGURE 4.8 — Courbes théoriques de $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$ et $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$ pour une boîte quantique à la limite radiative à très faible puissance d'excitation. Le temps de cohérence du laser d'excitation vaut $T_L = 80\, T_1$, le retard de l'interféromètre $\Delta t = 200\, T_1$.

Les variations de $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$ et $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$ tracées à partir de ces expressions sont représentées sur la figure 4.8. Elles ont été tracées dans le cas d'une puissance

d'excitation très faible ($s_0 \ll 1$), pour une boîte quantique à la limite radiative ($T_2 = 2\,T_1$) avec le temps de cohérence du laser d'excitation $T_\mathrm{L} = 80\,T_1$, le retard de l'interféromètre $\Delta t = 200\,T_1$.

Tout d'abord, sur la courbe rouge correspondant à une configuration croisée, on peut observer trois pics qui ont été étiquetés B1, A et B2 dans l'ordre des temps croissants. Le pic A est situé au centre autour de $\tau = 0$. Les pics B1 et B2 sont de part et d'autre du pic central A et placés à $\tau = \pm\Delta t$. Le pic central A correspond aux situations où les deux photons détectés ont suivi le même bras dans l'interféromètre : court-court ou long-long, ce qui revient à la situation d'un interféromètre de HBT. Le pic B1 correspond à la configuration long-court et B2 à court-long — l'ordre donné correspondant à START-STOP.

Avec une source de photons uniques, le dégroupement des photons assure que la probabilité d'émettre deux photons simultanément est nulle. Si le photon START est passé par le bras court, la probabilité de détection s'annule dans le cas où un photon émis simultanément serait passé par le bras long, arrivant Δt plus tard. Cela constitue le pic B2 situé à $\tau = \Delta t$. Un raisonnement symétrique où c'est le photon STOP qui est passé par le bras court conduit au pic B1 situé à $\tau = -\Delta t$.

Finalement, avec des séparatrices équilibrées, la moitié des paires de photons auront emprunté le même bras, un quart sera en configuration court-long et un autre quart en long-court. Cela donne le poids respectif des trois pics, et on a en particulier $g^{(2X)}(0) = 0{,}5$.

En configuration de polarisation parallèle entre les deux bras (courbe bleue), la différence avec la courbe en configuration croisée est la composante longue qui s'ajoute et aboutit à $g^{(2X)}(0) = 0$. Du fait que cette composante n'est présente que dans le cas où la polarisation est identique entre les deux bras, on en déduit qu'elle est liée à des effets d'interférences entre les deux bras. Cette composante longue croît en $1 - \mathrm{e}^{-t/T}$ où le temps caractéristique T vaut $40\,T_1$, c'est-à-dire $T_\mathrm{L}/2$.

Cette courbe étant tracée à très faible puissance d'excitation, et la boîte quantique considérée étant à la limite radiative, seule la diffusion élastique du laser par le système à deux niveaux subsiste dans la photoluminescence de la boîte quantique. D'après l'expression (3.2.10), $g^{(1)}(\tau)$ est alors de la forme $\mathrm{e}^{-t/T_\mathrm{L}}$. Or, d'après (4.2.17a), le terme d'interférences dans $g^{(2X)}(\tau)$ est en $1 - |g^{(1)}(\tau)|^2 = 1 - \mathrm{e}^{-2t/T_\mathrm{L}}$ pour $\tau \neq 0, \pm\Delta t$. La composante longue est donc bien reliée aux interférences, ce que l'on retrouve dans les expressions théoriques.

De plus, seule la présence du terme d'interférences avec $g^{(1)}(0) = 1$ et une source de photons dégroupés avec $g^{(2)}(0) < 1$ permet d'obtenir $g^{(2X)}(0) < 0{,}5$, ce qui explique pourquoi, avec une boîte quantique, on obtiendra $g^{(2X)}(0) = 0$ dans un cas idéal.

4.2.5 Mesures d'indiscernabilité en excitation impulsionnelle et en excitation continue

Si dans ce travail, les mesures d'indiscernabilité ont toutes été effectuées sous excitation continue, il est également possible d'effectuer ces mesures sous excitation impulsionnelle. Ces deux modes d'excitation changent fondamentalement les expériences visant à établir l'indiscernabilité des photons, et en particulier l'interprétation que l'on peut faire des mesures résultantes.

Avec une excitation impulsionnelle, le principe de l'interféromètre de HOM consiste à superposer deux impulsions successives sur la séparatrice de sortie, ce qui conduit à l'observation d'interférences en observant la disparition des coïncidences à délai nul lorsqu'il y a parfaite indiscernabilité. Le montage utilisé est schématisé sur la figure 4.9. Sur cette figure, deux photons successifs émis par la boîte quantique sont séparés de 2 ns. Pour que les deux photons se superposent à la sortie de l'interféromètre, il faut donc introduire un retard de 2 ns entre les bras. Chaque point de la courbe de visibilité correspond à une valeur du retard de l'interféromètre. Pour mesurer la courbe, celui-ci est modifié et parcourt une plage autour de 2 ns.

La mesure du taux de coïncidences à la sortie permet de détecter un effet de coalescence, c'est-à-dire la perte de coïncidences du fait des interférences à deux photons. Si ces photons sont parfaitement indiscernables, on observe donc un minimum de coïncidences à 0 pour un retard de 2 ns exactement, qui correspond à un maximum de visibilité des interférences. Toutefois, avec une boîte quantique affectée d'un temps $T_2 < 2\,T_1$, et dans le cas de détecteurs lents devant T_1 et T_2, le minimum de coïncidences est limité par les fluctuations d'énergie d'émission, que l'on peut également voir comme de la gigue *(jitter)*, due à la présence de déphasage pur. Dans ce cas, le minimum de coïncidences sera limité par le rapport $\frac{T_2}{2\,T_1}$ qui correspond à la probabilité de recouvrement de deux photons successifs [Bylander *et al.* 2003]. La figure 4.10 donne un exemple de mesure de taux de coïncidences en excitation impulsionnelle, tirée de l'article [Santori, Fattal, Vučković *et al.* 2002]. Cette mesure donne la probabilité de détecter une coïncidence en fonction du retard Δt introduit par l'interféromètre. Le creux de coïncidences observé est une signature de l'effet de coalescence et la valeur à $\Delta t = 0$ est $\frac{1}{2} \cdot \left(1 - \frac{T_2}{2T_1}\right)$, qui est donc limitée par le rapport $\frac{T_2}{2T_1}$.

En excitation continue, le retard introduit par l'interféromètre reste constant, comme sur la figure 4.11, et l'enjeu est de disposer d'un montage de mesure de corrélations dont la résolution temporelle est suffisamment grande pour observer directement les interférences. La différence importante réside dans le fait que le rapport $\frac{T_2}{2\,T_1}$ n'a ici pas d'influence directe sur la valeur de la courbe de $g^{(2X)}(\tau)$ à $\tau = 0$ étant donné qu'il n'y a pas de synchronisation liée aux impulsions d'excitation et que la gigue qui pouvait apparaître sous excitation impulsionnelle n'a pas d'influence

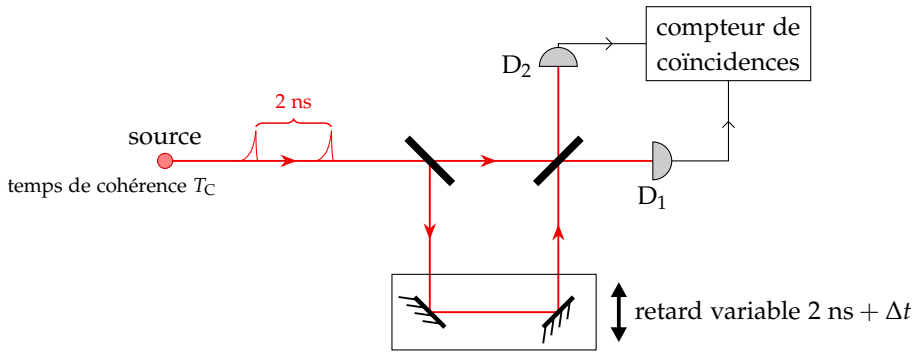


FIGURE 4.9 — Interféromètre de HOM pour l'excitation impulsionnelle : le retard entre les deux bras est variable ; on s'intéresse aux nombre de coïncidences de détection.

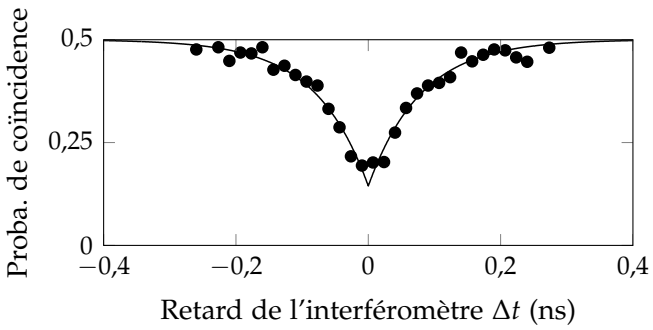


FIGURE 4.10 — Mesure du taux de coïncidence en fonction du retard Δt de l'interféromètre. Mesure extraite de [SANTORI, FATTAL, VUČKOVIĆ *et al.* 2002, figure 4].

puisque les détecteurs doivent cette fois être plus rapides que les temps T_1 et T_2. Dans ce cas de figure, les photons détectés parfaitement simultanément seront toujours indiscernables. On peut relier cela au fait que leur écart d'énergie est alors très mal défini, ce qui assure un recouvrement spectral, l'indiscernabilité, et donc la coalescence et $g^{(2X)}(0) = 0$. Ainsi, plus les photons sont proches en énergie, moins leur écart temporel doit être faible pour mesurer un phénomène de coalescence : cela résultera en un creux très large sur la mesure de $g^{(2X)}(\tau)$, plus facile à résoudre pour le système de détection. À l'inverse, des photons faiblement indiscernables qui auront un spectre très large, avec éventuellement des fréquences différentes, aboutiront à un creux très étroit, difficile à résoudre pour le système de détection. Observer les interférences à deux photons se résume donc à disposer d'un système de détection assez rapide vis-à-vis de la largeur du creux induite par le recouvrement spectral des photons. On peut d'ailleurs mesurer dans $g^{(2X)}(\tau)$ les battements entre des photons ayant des fréquences proches, ce battement étant d'autant plus rapide — et le creux central d'autant plus étroit — que les fréquences des photons sont éloignées [LEGERO *et al.* 2004 ; LETTOW *et al.* 2010].

À titre d'exemple, la figure 4.12 montre le résultat d'une mesure de corrélation

effectuée à la sortie d'un interféromètre de HOM comme celui représenté sur la figure 4.11, avec comme source la boîte QDIII-bis excitée à basse puissance, avec un laser d'excitation ayant un temps de cohérence de 16 ns. La mesure expérimentale a été représentée à l'aide de points bleus, tandis que la courbe théorique évaluée à partir de l'expression (4.1.20) de $g^{(2X)}(\tau)$ est tracée en vert pointillé. Cette courbe théorique a été convoluée par la réponse instrumentale du système de détection pour aboutir à la courbe rouge ajustée à la mesure. Comparer ces deux courbes permet d'évaluer l'impact du système de mesure sur la courbe de corrélation : la valeur à $\tau = 0$ est fortement affectée car la courbe est étroite par rapport à la réponse instrumentale autour de $\tau = 0$ — largeur à mi-hauteur de 1,4 ns pour la composante fine de $g^{(2X)}(\tau)$ et de 1,0 ns pour la réponse instrumentale. Enfin, le fait que la courbe théorique dite « non convoluée » n'aille pas jusqu'à 0 lorsque $\tau = 0$ est dû au facteur de visibilité $V_0 < 1$ des interférences, présent dans l'expression (4.1.20), qui prend en compte les imperfections du montage qui dégradent légèrement la visibilité des interférences ; ici, $V_0 = 94\%$.

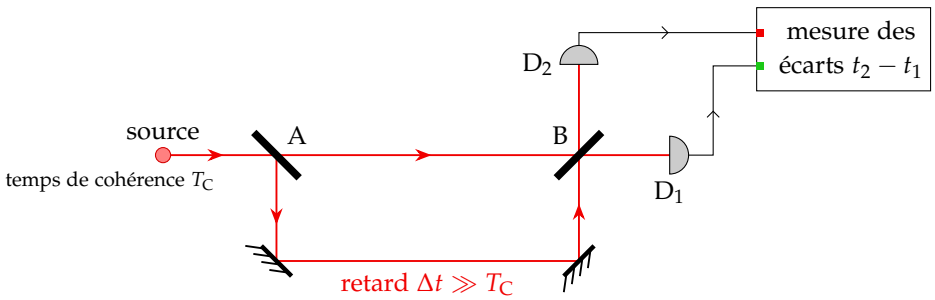


FIGURE 4.11 — Interféromètre de HOM pour l'excitation continue : le retard entre les deux bras est fixe mais long devant le temps de cohérence de la source T_C ; on mesure les écarts temporels $\tau = t_2 - t_1$ entre les détections.

En conclusion, dans le cas des interférences à deux photons sous excitation continue, la valeur à $\tau = 0$ de $g^{(2X)}(\tau)$ est liée au facteur de visibilité des interférences, mais a priori pas à des problèmes de recouvrement spectral qui sont précisément ceux que l'on veut sonder car il s'agit d'un paramètre difficile à maîtriser. La convolution par la réponse instrumentale du système de détection couple la valeur de $g^{(2X)}(0)$ à la largeur de $g^{(2X)}(\tau)$, mais cela n'est pas précis et dépend du système de détection. Nous allons maintenant voir comment évaluer la visibilité des interférences à deux photons en fonction de τ, puis comment caractériser la dynamique de cette visibilité indépendamment du système de détection.

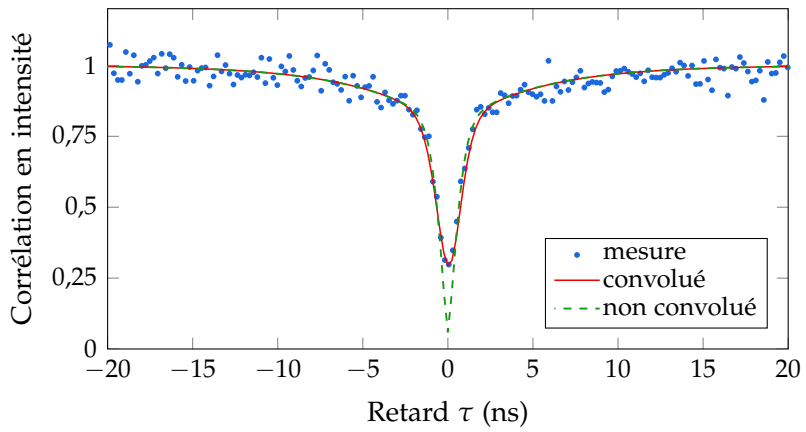


FIGURE 4.12 — Mesure de corrélation en intensité à la sortie de l'interféromètre de HOM en excitation continue, en fonction de l'écart τ entre les instants de détection de chacun des détecteurs.

4.2.6 Visibilité des interférences à deux photons et temps moyen de coalescence

Pour évaluer la visibilité des interférences à deux photons, il est usuel d'utiliser la définition suivante [ATES *et al.* 2009 ; PATEL, A. J. BENNETT, COOPER *et al.* 2008 ; WEILER *et al.* 2013] :

$$V_{\mathrm{HOM}}(\tau) = \frac{g_{\perp}^{(2X)}(\tau) - g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)}{g_{\perp}^{(2X)}(\tau)} \tag{4.2.18}$$

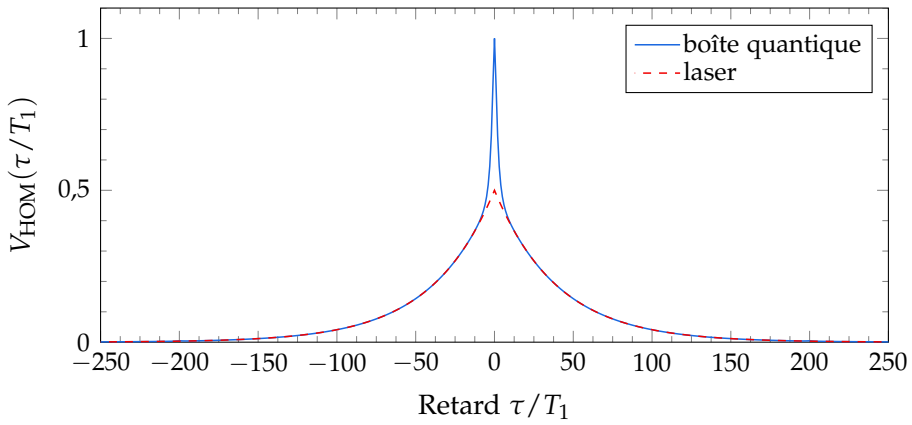


FIGURE 4.13 — Courbes théoriques de visibilité des interférences à deux photons. D'une part (courbe bleue continue), pour une boîte quantique à la limite radiative, à très faible puissance d'excitation. D'autre part (courbe rouge pointillée), pour les interférences du laser d'excitation mesuré seul. Le temps de cohérence du laser est $T_{\mathrm{L}} = 80\,T_1$.

Si $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$ évalue la part de dégroupement liée à la statistique des sources, $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$

prend également en compte la part de dégroupement liée aux interférences à deux photons. La différence de ces deux quantités au numérateur permet d'évaluer la part de dégroupement uniquement due aux interférences. Le dénominateur permet ensuite de normaliser la visibilité en prenant la statistique comme référence, ce qui a pour conséquence d'avoir $V_{\mathrm{HOM}}(0) = 1$ pour une source où $g^{(2X)}_{/\!/}(0) = 0$.

La figure 4.13 montre une courbe de visibilité tracée pour les mêmes paramètres que ceux de la figure 4.8. Sur cette figure sont représentées les courbes de visibilité tracées pour un laser de statistique poissonnienne, de profil spectral lorentzien et de temps de cohérence $T_{\mathrm{L}} = 80\,T_1$, et pour une boîte quantique à la limite radiative, à très basse puissance, excitée par ce même laser. La visibilité des interférences avec le laser décroît exponentiellement, ce qui est un comportement caractéristique d'un profil spectral lorentzien, avec un temps de décroissance à $1/\mathrm{e}$ de $40\,T_1 = T_{\mathrm{L}}/2$ — le facteur $1/2$ étant dû au fait que l'on mesure ici $|g^{(1)}(\tau)|^2$. La valeur à $\tau = 0$ dans le cas du laser est au plus de 0,5 qui correspond au résultat que l'on peut établir classiquement (cf. paragraphe 4.1.4, p. 118). Sur la courbe de visibilité dans le cas de la boîte quantique, on retrouve la même décroissance exponentielle pour des temps supérieurs à $\sim 10\,T_1$, et une composante centrale fine qui monte à 1 pour $\tau = 0$. Cette composante centrale n'apparaît qu'au moment de normaliser la différence $g^{(2)}_{\perp}(\tau) - g^{(2)}_{/\!/}(\tau)$ par $g^{(2)}_{\perp}(\tau)$. Il s'agit donc d'un effet statistique, qui est le même effet qui conduit à $g^{(2)}_{/\!/}(0) = 0$.

4.2.7 Fenêtre temporelle de coalescence

La manière usuelle d'estimer l'indiscernabilité est de mesurer $V_{\mathrm{HOM}}(0)$, comme cela est fait par exemple dans [Kiraz *et al.* 2005 ; Patel, A. J. Bennett, Cooper *et al.* 2008 ; Weiler *et al.* 2013]. Toutefois, comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.5, cette valeur est en théorie 1 dans le cas d'un interféromètre idéal, et ce quelle que soit la source. Le fait que les mesures soient différentes de la valeur idéale est lié à la résolution temporelle finie des détecteurs vis-à-vis des temps caractéristiques de la courbe de visibilité. C'est la convolution des mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ par la réponse instrumentale qui donne $V_{\mathrm{HOM}}(0) < 1$*. La valeur à $\tau = 0$ de la courbe de visibilité n'est donc pas une caractéristique fiable et reproductible de l'indiscernabilité sous excitation continue, qui se caractérise plutôt par les différents temps caractéristiques du pic d'indiscernabilité.

Nous définissons dans ce paragraphe un critère quantitatif qui vise à évaluer le temps qu'il faut attendre entre deux détections pour ne plus observer de coalescence, c'est-à-dire d'interférences à deux photons.

* Notons qu'en pratique $V_{\mathrm{HOM}}(0) < 1$ également du fait des coefficients de visibilité V_0 dans les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ en polarisation croisée ou parallèle qui sont différents de leur valeur idéale 0 ou 1 respectivement.

Lorsque la courbe de visibilité n'est constituée que d'une seule composante, ce critère est simple : on peut mesurer la largeur à mi-hauteur de la courbe, ou la largeur à $1/\mathrm{e}$ dans le cas d'une décroissance exponentielle, comme c'est le cas pour un laser de statistique poissonnienne ayant un profil de raie lorentzien.

Or, comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.4, dans le cas d'une boîte quantique, nous pouvons observer deux composantes sur la courbe de visibilité. Ces deux composantes sont caractérisées par des temps caractéristiques différents, et des amplitudes différentes. Estimer la largeur de la courbe ne suffit alors plus, et une solution peut être d'intégrer l'aire sous la courbe de visibilité. Sachant que celle-ci est normalisée, cette aire a la dimension d'un temps, et est une estimation du temps moyen de décroissance de la courbe de visibilité, prenant en compte toutes les composantes présentes. Nous appelons cette quantité la *fenêtre temporelle de coalescence* (FTC).

Pour s'en convaincre, il suffit de prendre l'exemple d'une décroissance multi-exponentielle :

$$V(t) = A_1\,\mathrm{e}^{-|t|/t_1} + A_2\,\mathrm{e}^{-|t|/t_2} \tag{4.2.19}$$

Calculons la FTC associée :

$$\int V(t)\,\mathrm{d}t = 2\,A_1\,t_1 + 2\,A_2\,t_2 \tag{4.2.20}$$

La FTC coïncide donc avec la moyenne des temps caractéristiques t_i des différentes composantes exponentielles de $V(t)$, avec la prise en compte de leurs poids respectifs A_i.

Pour prendre un exemple plus concret, nous pouvons calculer la FTC des courbes de visibilité de la figure 4.13, qui vaut $40\,T_1$ dans le cas du laser seul — on a donc $\mathrm{FTC} = T_\mathrm{L}$. Dans le cas de la boîte quantique, la FTC vaut $41\,T_1$: il s'agit de la FTC du laser à laquelle s'ajoute l'aire de la composante centrale fine due à la statistique de la source de photons uniques. À titre de comparaison, la largeur à mi-hauteur de cette même courbe de visibilité vaut $8{,}8\,T_1$., ce qui ne tient absolument pas compte de la composante longue, pourtant non négligeable.

4.3 Étude expérimentale de l'indiscernabilité

Dans cette section, nous nous intéressons à la mesure de $g^{(2X)}(\tau)$ et à l'évolution de son comportement lorsque l'on modifie la puissance d'excitation d'une part, et le temps de cohérence du laser d'excitation d'autre part. La première étude permet de comprendre en quoi les mesures d'indiscernabilité sont affectées par le comportement de la boîte quantique en fonction de la puissance, décrit dans les paragraphes 1.4.5 et 1.4.6, et en particulier dans le chapitre 3 qui traite des fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ rentrant en compte dans $g^{(2X)}(\tau)$. La seconde étude vise à comprendre l'effet

d'une modification du temps de cohérence du laser d'excitation sur les mesures d'indiscernabilité, en particulier lorsque son effet est le plus visible, c'est-à-dire lorsque la puissance d'excitation est faible devant la puissance de saturation. Cette étude a fait l'objet d'une publication [Proux *et al.* 2015].

4.3.1 Description de l'expérience

Dans notre montage représenté sur la figure 4.14, l'interféromètre est constitué d'un cube séparateur unique, utilisé deux fois pour jouer le rôle des séparatrices A et B, et les fibres sont d'une part une fibre de 1 m pour le bras court et de 10 m pour le bras long. Il s'agit de fibres Thorlabs PM780-HP à maintien de polarisation. En prenant en compte l'indice effectif de la fibre, le retard introduit par l'interféromètre est ainsi de 43,5 ns.

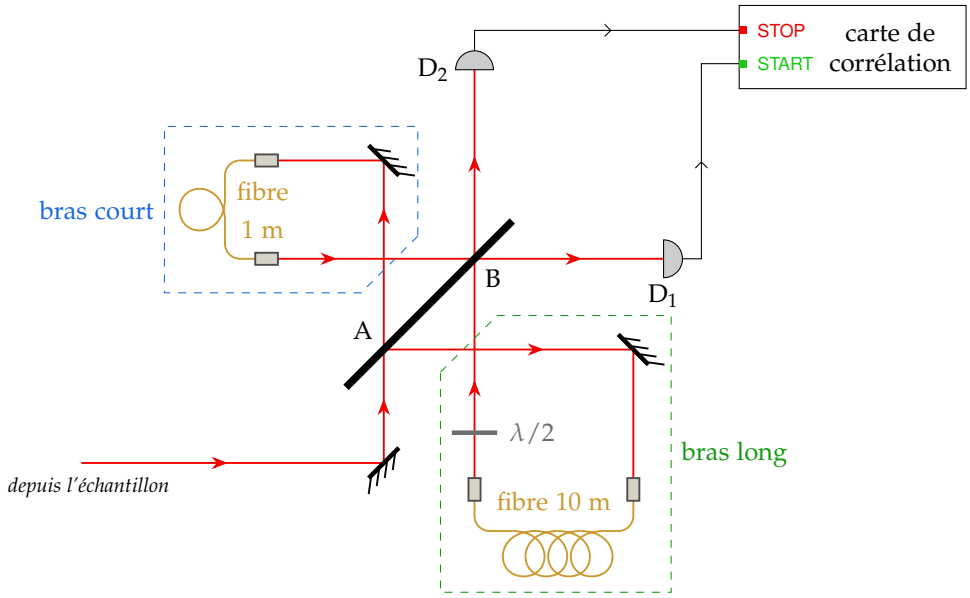


Figure 4.14 — Schéma de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel utilisé. Le retard entre les deux bras est de 43,5 ns.

Destruction des interférences à un photon

Nous avons vu au paragraphe 4.2.1 qu'il était très important d'avoir $\Delta t \gg T_C$. Tant que le retard introduit par l'interféromètre est plus faible que le temps de cohérence des photons, il y a un recouvrement du photon avec lui-même à la sortie de l'interféromètre, qui produira des interférences à un photon. Les interférences à un photon sont analogues aux interférences classiques que l'on observe de manière usuelle avec un interféromètre, pour lesquelles la relation de phase entre les champs incidents de part et d'autre de la séparatrice de sortie est déterminée en moyenne par

le retard introduit par l'interféromètre vis-à-vis du temps de cohérence de la source.

Plus concrètement, pour s'assurer de la disparition des franges d'interférences à un photon, intéressons-nous aux mesures de la figure 4.15 : en introduisant un retard de 8 m dans l'air (soit $\Delta t = 27$ ns) dans un interféromètre de Michelson, puis en envoyant la lumière issue de notre diode laser dans cet interféromètre, nous avons mesuré le contraste des franges d'interférence en modifiant pour chaque point le temps de cohérence T_L du laser*. Comme ces mesures ont été effectuées rapidement, la valeur du palier de contraste pour $T_L > 30$ ns est d'environ 0,5 — inférieure à 1 du fait des imperfections d'alignement de l'interféromètre. Cela ne change pas le comportement de la courbe, où la visibilité décroît fortement lorsque le temps de cohérence devient plus court que 30 ns pour atteindre des valeurs très proches de 0 à des temps inférieurs à 10 ns. Nous pouvons donc constater que pour $T_L < \Delta t$, le contraste chute très fortement : les interférences à un photon sont alors neutralisées.

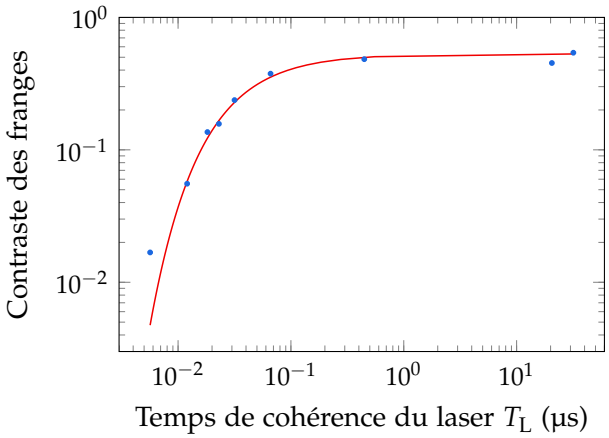


FIGURE 4.15 — Contraste des franges d'interférences du second ordre (à un photon) en fonction du temps de cohérence T_L du laser, avec un retard de 8 m entre les bras.

Si l'on se penche plus en détails sur la technologie permettant de contrôler la cohérence du laser, ce qui est fait en annexe A, le modulateur de bruit blanc qui détruit la cohérence a une bande passante pouvant dépasser de 100 MHz. Cela signifie qu'au bout d'un temps inférieur à 10 ns, la phase du champ émis par la diode laser est parfaitement aléatoire. Or les flux de photons détectés sont au plus de l'ordre de 100 kHz et le temps mort des détecteurs est d'environ 10 ns, ce qui assure que deux détections successives ne peuvent être effectuées à une fréquence supérieure à 10 MHz, une telle rapidité étant très peu probable. Ceci assure que deux détections successives d'un photon par un détecteur sont faites dans des conditions indépendantes, ce qui valide les critères exposés au paragraphe 4.2.1.

En conclusion de ce paragraphe, le contrôle de la cohérence de notre laser permet

* Pour plus d'informations sur la technique expérimentale de modification du temps de cohérence, consulter l'annexe A.

de brouiller totalement les interférences à un photon et de mesurer correctement les interférences à deux photons, dans les circonstances exposées au paragraphe 4.2.1 — en particulier, on vérifie $\Delta t \gg T_{\mathrm{L}}$.

4.3.2 Étude en fonction de la puissance d'excitation

Tout d'abord, étudions le comportement des mesures de HOM vis-à-vis de la puissance d'excitation. Pour cela, la puissance d'excitation de la boîte quantique est modifiée pour chaque point de mesure, en veillant à passer du régime de diffusion Rayleigh résonnante (à basse puissance) au régime fortement saturé (à haute puissance). Pour chaque puissance, on fait l'acquisition de $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$, puis de $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$. À basse puissance, avec 10^4 photons/s dans le meilleur des cas, une acquisition de $g^{(2X)}(\tau)$ peut prendre plusieurs heures.

La session de mesure présentée sur la figure 4.16 explore des puissances allant de $s_0 = 0{,}09$ à $s_0 = 3{,}4$ pour la boîte QDIII-bis*. Trois puissances d'excitation sont tracées ici (une pour chaque colonne) et sont représentatives de l'évolution des courbes de $g^{(2X)}(\tau)$ lorsque la puissance est modifiée autour de la puissance de saturation. Les deux premières lignes donnent respectivement $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$ et $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$. Il s'agit directement des données expérimentales normalisées de manière à obtenir 1 pour des retards longs. La troisième ligne présente la courbe de visibilité établie avec les mesures des deux premières lignes, en utilisant l'expression (4.2.18).

Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.4, lorsque les polarisations des deux bras sont croisées (deuxième ligne), on détruit les phénomènes d'interférences entre ces deux bras. Ainsi, on peut distinguer trois pics liés à la statistique de photons uniques de la source et aux différentes combinaisons de chemins entre les deux bras de l'interféromètre. À la différence de la courbe théorique de la figure 4.8, les pics n'atteignent pas leur valeur théorique. Pour la mesure à $s_0 = 0{,}09$, par exemple, $g_{\perp}^{(2X)}(0) = 0{,}55 \pm 0{,}03$ au lieu d'une valeur idéale de 0,5. De même, les pics B1 et B2 descendent respectivement à $0{,}82 \pm 0{,}02$ et $0{,}78 \pm 0{,}02$, au lieu de 0,75 dans le cas idéal. Le fait que ces pics passent par un minimum plus élevé que la valeur idéale est dû à la réponse instrumentale du système de détection. De plus, la légère différence entre l'amplitude des deux pics est lié au fait que la séparatrice n'est pas parfaitement équilibrée†.

La première ligne donne les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ en configuration de polarisation

---

* On rappelle que s est la paramètre de saturation : $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. Il dépend donc de T_1 et T_2, ainsi que de la puissance de saturation qui définit le coefficient de proportionnalité entre la référence de puissance d'excitation mesurée à l'aide d'un puissancemètre et Ω^2.

† En effet, des mesures des coefficients de réflexion et de transmission du cube séparateur à la longueur d'onde de travail donnent $R_{\text{réel}} = 41\%$ et $T_{\text{réel}} = 51\%$. Le total ne fait pas 100% du fait de l'absorption dans le cube. Ainsi, on se ramène à des coefficients normalisés par rapport à l'intensité totale sortante, ce qui donne $R = 0{,}45$ et $T = 0{,}55$.

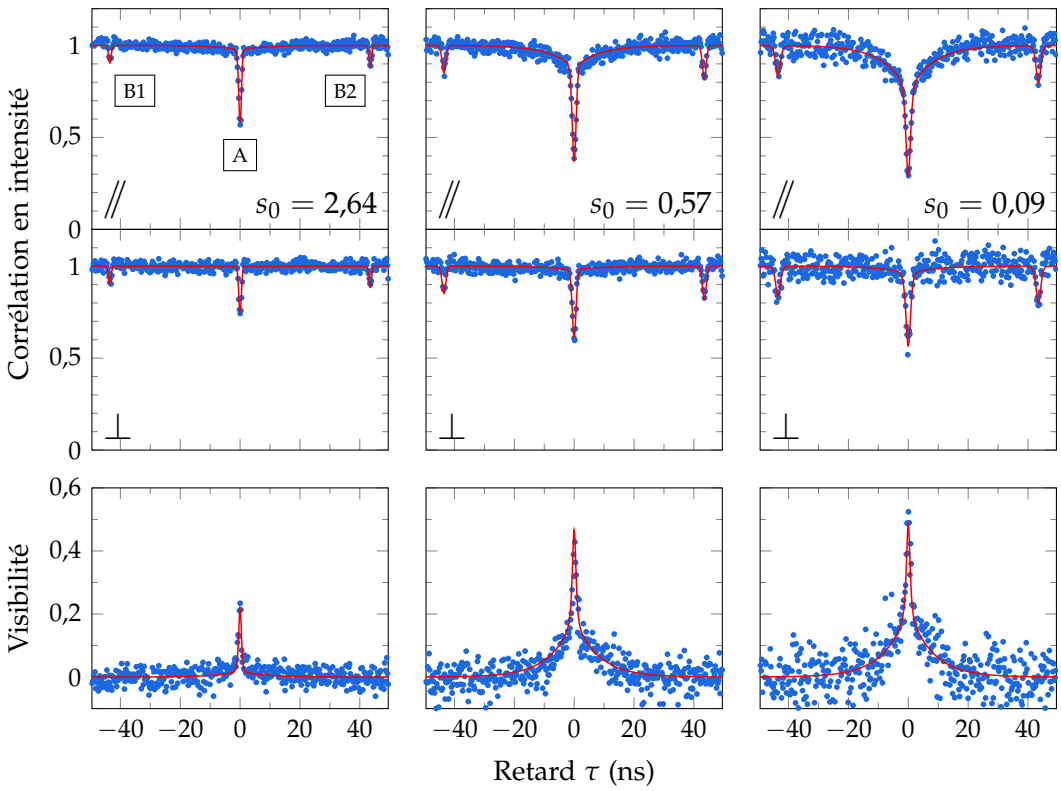


FIGURE 4.16 — Mesures de HOM pour trois puissances d'excitation autour de la puissance de saturation. Une puissance d'excitation correspond à une colonne, et pour chaque puissance sont présentées respectivement, de haut en bas, les mesures de corrélation correspondant à $g^{(2X)}_{/\!/}$, à $g^{(2X)}_{\perp}$ et à la visibilité des interférences à deux photons calculée à partir des mesures de corrélation.

parallèle. Les différences avec le cas croisé se situent au niveau du pic A. Il apparaît à basse puissance une composante longue dont la constante de temps (8 ns) est la moitié de celle du laser. Ce comportement a été prévu dans le paragraphe 4.2.4 et est lié à la diffusion élastique du laser d'excitation qui introduit une composante longue dans $g^{(1)}(\tau)$ et donc dans le terme d'interférences de $g^{(2X)}(\tau)$. Lorsque la puissance est plus élevée, cette composante disparaît au profit d'une composante plus courte liée à la diffusion inélastique par le système à deux niveaux. Cette composante est difficile à discerner du pic de dégroupement lié à la statistique car elle a les mêmes temps caractéristiques, mais la valeur de $g^{(2X)}(0)$ est plus faible que dans le cas des polarisations croisées : à $s_0 = 2{,}64$, par exemple (colonne de gauche), $g^{(2X)}_{\perp}(0) = 0{,}72 \pm 0{,}02$ tandis que $g^{(2X)}_{/\!/}(0) = 0{,}57 \pm 0{,}02$; la largeur à mi-hauteur est $1{,}1 \pm 0{,}1$ ns pour les deux configurations. Sur la mesure en configuration parallèle, une composante courte due aux interférences vient donc renforcer le pic de dégroupement qui a la même dynamique.

Enfin, la troisième ligne représente les courbes de visibilité obtenues à partir des

données présentées sur les deux premières lignes. Dans une situation idéale (cf. paragraphe 4.2.6), on devrait mesurer $V_{\mathrm{HOM}}(0) = 1$ pour une source de photons uniques. Cependant, la composante fine est fortement affectée par la résolution temporelle du système de détection. À cet effet se rajoute le fait que les coefficients de visibilité en configuration croisée ou parallèle ne sont pas, respectivement, 0 et 1, ce qui a logiquement tendance à diminuer la visibilité des interférences.

Les ajustements présentés (courbes rouges continues) sont tracés avec les paramètres suivants : $T_1 = 0{,}3$ ns, $T_2 = 0{,}52$ ns et $T_{\mathrm{L}} = 16$ ns, les coefficients de visibilité dans les cas croisé et parallèle étant respectivement $V_{0,/\!/} = 0{,}80$ et $V_{0,\perp} = 0{,}14$ et les coefficients de la séparatrice $R = 0{,}45$ et $T = 0{,}55$. L'ajustement ne concerne que les coefficients de visibilité V_0 et le coefficient de conversion entre la référence de puissance d'excitation et Ω^2.

On pourra remarquer en particulier que les valeurs utilisées pour T_1 et T_2 sont différentes de celles établies au chapitre précédent (cf. paragraphe 3.3.7, p. 101). Bien qu'à l'extrémité des intervalles d'incertitude, les valeurs utilisées restent néanmoins proches et les ajustements sont ainsi bien meilleurs. Nous verrons au chapitre 5 que la prise en compte d'un fond parasite cohérent dû à la diffusion élastique du laser d'excitation permet d'ajuster ces courbes en conservant les valeurs de T_1 et de T_2 établies au chapitre 3.

Effet de la résolution temporelle des détecteurs

L'amplitude des différents pics observés sur les mesures de la figure 4.16 est donc fortement affectée par la réponse instrumentale du système de détection. Sur la figure 4.17 sont représentées les valeurs de $V_{\mathrm{HOM}}(0)$, c'est-à-dire l'amplitude du pic de la courbe de visibilité des interférences, à $\tau = 0$. $V_{\mathrm{HOM}}(0)$ est la plus élevée à basse puissance, avec $0{,}49 \pm 0{,}06$ à $s_0 = 0{,}09$, puis elle diminue lorsque la puissance d'excitation augmente, pour atteindre $0{,}14 \pm 0{,}03$ à $s_0 = 3{,}4$. La courbe verte pointillée est l'estimation théorique de $V_{\mathrm{HOM}}(0)$ à partir des expressions (4.2.16) et (4.2.18) avec les paramètres précisés au paragraphe précédent, sans convoluer $g^{(2X)}(\tau)$ par la réponse temporelle des détecteurs. Cette courbe est très éloignée des valeurs expérimentales et ne change pas en fonction de la puissance d'excitation en restant à 0,75. Lorsque l'on convolue les courbes théoriques de $g^{(2X)}(\tau)$ par la réponse impulsionnelle des détecteurs, on obtient la courbe rouge, qui est alors très proche des données expérimentales.

La valeur théorique de $V_{\mathrm{HOM}}(0)$, sans la convolution par les détecteurs, ne dépend pas de la puissance mais seulement des coefficients de visibilité V_0 pour les configurations de polarisation parallèle ou croisée. Cependant, la largeur de la courbe de visibilité, et en particulier de la composante fine observée sur les mesures de la figure 4.16, est fortement modifiée et diminue lorsque la puissance d'excitation augmente. Lorsque l'on convolue la courbe théorique par la réponse instrumentale, la valeur de

$V_{\mathrm{HOM}}(0)$ diminue, d'autant plus lorsque la puissance d'excitation augmente.

Ainsi, lorsque la largeur de la composante fine, liée aux temps T_1 et T_2, est de l'ordre du temps de réponse des détecteurs, la réponse instrumentale affecte fortement $V_{\mathrm{HOM}}(0)$. Pour une même source, $V_{\mathrm{HOM}}(0)$ dépend donc du système de détection utilisé et ne sera qu'indirectement et partiellement caractéristique de cette source, contrairement au cas où l'on utilise une excitation impulsionnelle (cf. paragraphe 4.2.5, p. 129).

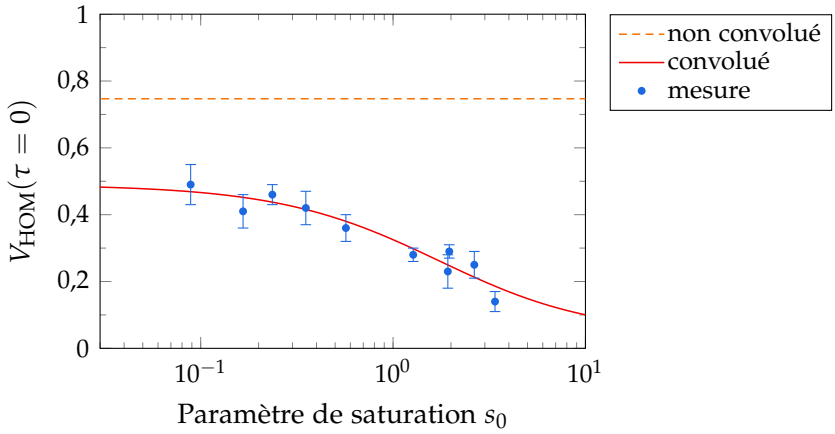


FIGURE 4.17 — Valeurs de $V_{\mathrm{HOM}}(\tau = 0)$ en fonction de la puissance d'excitation.

Fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation

Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.7, la fenêtre temporelle de coalescence (FTC) présente l'avantage de quantifier la dynamique du phénomène de coalescence, indépendamment du système de détection. Sur la figure 4.18, la fenêtre temporelle de coalescence est tracée en fonction de la puissance d'excitation. Chaque point est issu de deux acquisitions de $g^{(2X)}(\tau)$, en configuration croisée et parallèle. Ces deux acquisitions permettent de remonter à la courbe de visibilité $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$ des interférences, dont l'aire sous la courbe est la FTC*.

Ici, les mesures de FTC à haute puissance approchent de 0 — le point à plus haute puissance $s_0 = 3{,}4$ étant à $0{,}4 \pm 0{,}2$ ns. Dans ce régime de puissance, la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux est très faible, et la dynamique de $g^{(2X)}(\tau)$ et de la courbe de visibilité sont de plus en plus rapides, et donc de moins en moins perçues par le système de détection qui a une résolution temporelle finie. Lorsque la puissance d'excitation diminue et passe sous la saturation, on observe une croissance forte de la FTC qui atteint $3{,}4 \pm 0{,}5$ ns pour le point à plus basse puissance $s_0 = 0{,}09$.

* La visibilité étant affectée d'un bruit, cela introduit une forte incertitude sur l'aire sous la courbe. C'est cette incertitude qui est utilisée sur la valeur de la FTC.

La courbe rouge continue est une courbe théorique tracée en utilisant les mêmes paramètres que ceux de la figure 4.16. L'accord avec les points expérimentaux affectés de leur barre d'erreur est assez satisfaisante, et les comportements commentés plus haut se retrouvent. Notamment, à basse puissance, la FTC augmente en tendant vers 4,5 ns, fortement influencée par le temps de cohérence du laser d'excitation ($T_L = 16$ ns). On notera que cette valeur est liée au temps de cohérence du laser, mais est également fortement limitée par le rapport $\frac{T_2}{2\,T_1}$ et les coefficients de visibilité V_0. En effet, dans un cas idéal où $T_2 = 2\,T_1$ et $V_0 = 1$ et 0 en configuration parallèle et croisée, la FTC calculée avec le modèle atteint 8,5 ns, ce qui est légèrement supérieure à $T_L/2$ — le supplément étant lié à la statistique de photons uniques.

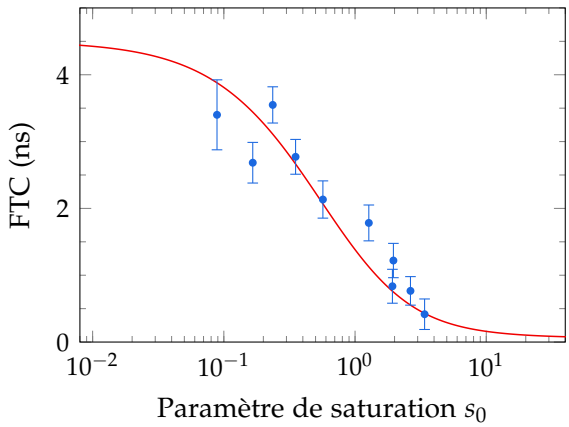


FIGURE 4.18 — Fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation.

4.3.3 Étude en fonction de la cohérence du laser d'excitation

À basse puissance d'excitation, les mesures d'interférences à deux photons dépendent donc fortement du temps de cohérence du laser. A priori, contrôler les propriétés de cohérence du laser devraient donc affecter la mesure de $g^{(2X)}(\tau)$ à basse puissance.

Afin d'étudier ce comportement, nous effectuons les mêmes mesures que précédemment, en utilisant une puissance d'excitation faible devant la puissance de saturation, et en modifiant cette fois le temps de cohérence du laser d'excitation* entre chaque point de mesure. Pour chaque valeur du temps de cohérence, $g^{(2X)}(\tau)$ est mesurée en configuration de polarisation parallèle. Chaque intégration de $g^{(2X)}(\tau)$ durant plus d'une heure, nous avons en revanche choisi de ne faire qu'une seule acquisition de $g^{(2X)}(\tau)$ en configuration croisée, qui, dans un cas idéal, ne dépend

* Le fonctionnement et la caractérisation du système de contrôle de la cohérence du laser sont exposés en détails à l'annexe A.

pas du temps de cohérence du laser d'excitation*.

Les mesures effectuées pour trois temps de cohérence du laser sont présentées sur la figure 4.19 — les trois mesures en configuration croisée sont en fait une seule mesure avec un temps de cohérence du laser $T_L = 12$ ns. La puissance d'excitation utilisée est relativement faible devant la saturation ($s_0 = 0{,}3$), afin de se placer dans le régime de diffusion Rayleigh. Au cours de cette session de mesure, le temps de cohérence du laser d'excitation a été modifié de $T_L = 9{,}9 \pm 1{,}5$ ns à 44 ± 8 ns. Les limites de cette plage sont due, pour la limite haute, au retard de l'interféromètre qui doit rester grand devant le temps de cohérence de la source. Le plus long temps (44 ns) ne vérifie d'ailleurs plus parfaitement cette condition puisque le retard de l'interféromètre vaut $\Delta t = 43{,}5$ ns. La limite basse de la plage explorée est due aux limites techniques de modulation de notre diode laser — plus la modulation est élevée, plus le temps de cohérence est faible. Mentionnons également le fait qu'il faut maintenir $T_L \gg T_1, T_2$ pour pouvoir décrire le comportement du système à deux niveaux dans le référentiel tournant du laser comme nous le faisons dans notre modèle théorique.

Les mesures de $g_{/\!/}^{(2X)}(\tau)$ et, en conséquence, les courbes de visibilité, sont effectuées à une puissance faible devant la saturation ($s_0 = 0{,}3$) et présentent la composante longue liée à la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux. Cette composante longue décroît exponentiellement avec un temps caractéristique de déclin de $T_L/2$. Le changement de constante de temps est alors visible et est en accord avec le changement de temps de cohérence du laser d'excitation.

Les courbes rouges sont tracées avec les mêmes paramètres que lors de l'étude précédente, c'est-à-dire $T_1 = 0{,}3$ ns et $T_2 = 0{,}52$ ns, un retard de l'interféromètre $\Delta t = 43{,}5$ ns et les coefficients de la séparatrice $R = 0{,}45$ et $T = 0{,}55$. Seuls changent les facteurs de visibilité V_0 qui valent 0,8 et 0 respectivement en configuration de polarisation parallèle et croisée. S'il y a un bon accord global entre ces courbes théoriques et les courbes mesurées, on peut relever un léger désaccord dans l'amplitude de la composante due à la diffusion élastique, qui semble être sous-estimé par le modèle. Nous verrons au chapitre 5 que ce désaccord est résolu par l'introduction dans le modèle d'un fond laser parasite en plus de la photoluminescence de la boîte quantique.

Effet de la résolution temporelle des détecteurs

Intéressons-nous de nouveau à la valeur à $\tau = 0$ de la courbe de visibilité, représentée est représenté sur la figure 4.20. Les points expérimentaux correspondent aux

* Ce n'est pas tout à fait vrai car en réalité le coefficient de visibilité $V_0 > 0$, et comme nous le verrons au chapitre 5, il existe un fond parasite dû à la diffusion élastique vers le système de détection du laser d'excitation. Ces deux facteurs introduisent une légère dépendance de $g^{(2X)}(0)$ au temps de cohérence du laser d'excitation en configuration de polarisation croisée.

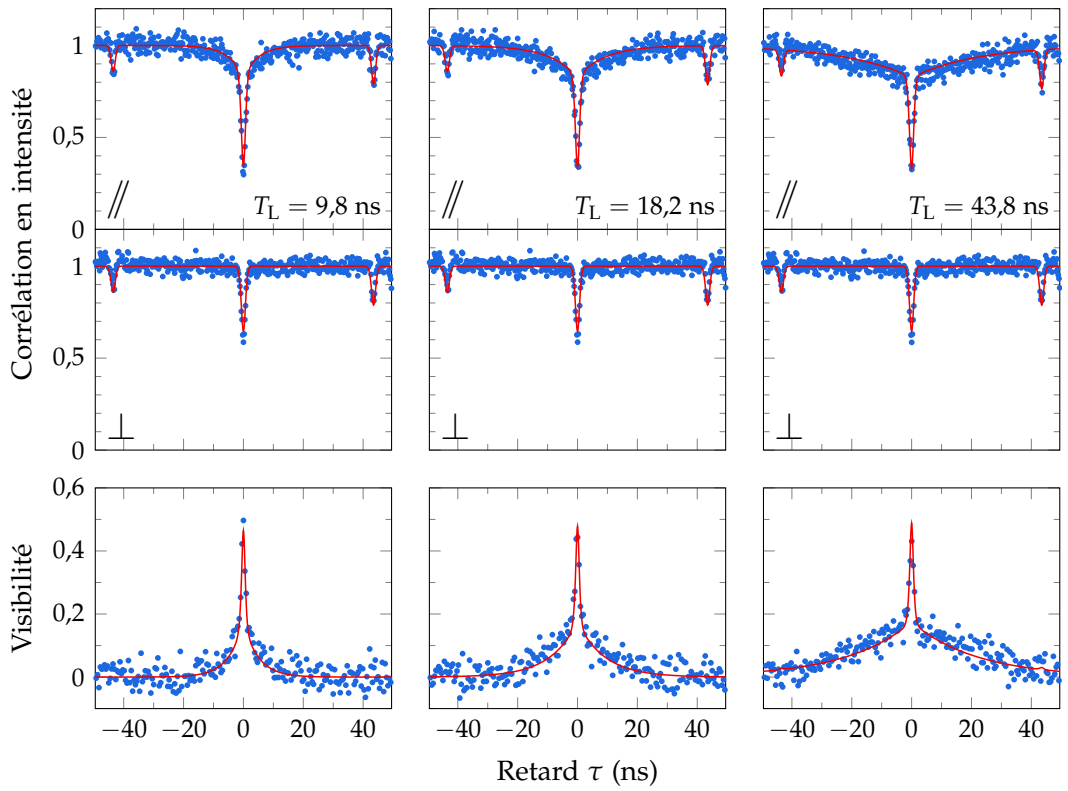


FIGURE 4.19 — Mesures de HOM pour différents temps de cohérence T_L du laser d'excitation.

valeurs de $V_{HOM}(0)$ extraites des mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ en configuration de polarisation parallèle et croisée. Quel que soit le temps de cohérence du laser d'excitation, les valeurs expérimentales sont comprises entre $0{,}44 \pm 0{,}04$ pour $T_L = 44$ ns et $0{,}50 \pm 0{,}03$ pour $T_L = 9{,}8$ ns. Elles semblent donc très peu affectées par le changement de temps de cohérence du laser d'excitation. La courbe verte pointillée est la courbe théorique tracée avec les paramètres utilisés pour les ajustements de la figure 4.19, sans convoluer par la réponse instrumentale du système de détection. La courbe rouge continue prend en compte la réponse instrumentale.

Comme pour l'étude précédente, lorsque la courbe théorique ne prend pas en compte la réponse instrumentale, $V_{HOM}(0)$ vaut 0,78 et ne dépend pas du temps de cohérence du laser d'excitation, mais uniquement des coefficients de visibilité V_0 en polarisation croisée et parallèle. Lorsque l'on prend en compte la réponse instrumentale, $V_{HOM}(0)$ croit brutalement entre $T_L = 0$ et 5 ns, puis se stabilise avec des valeurs entre 0,45 et 0,5 pour $T_L > 5$ ns. On retrouve alors la faible sensibilité au temps de cohérence du laser, ce qui est en parfait accord avec le comportement mesuré. Bien que le comportement pour $T_L < 5$ ns soit logique du fait que le temps de cohérence approche alors du temps de réponse des détecteurs, l'hypothèse $T_L \gg T_1, T_2$ n'est pas vérifiée et le modèle sort ici de sa zone de validité.

Comme T_L est toujours grand devant le temps de résolution des détecteurs qui est de l'ordre de 1 ns, les composantes dont la dynamique est de l'ordre de T_L sont parfaitement résolues par le système de détection. La modification de T_L a donc peu d'effet sur $V_{HOM}(0)$, dans les plages de temps de cohérence que nous pouvons explorer.

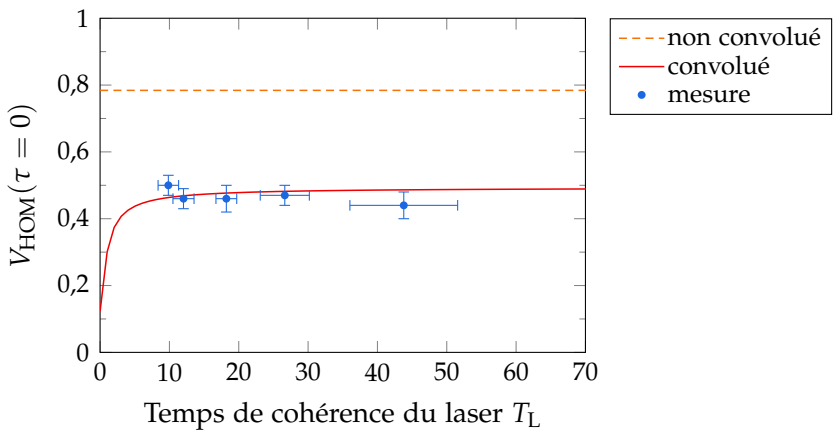


FIGURE 4.20 — Valeurs de $V_{HOM}(\tau = 0)$ en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation, dans le régime de diffusion Rayleigh.

Fenêtre temporelle de coalescence en fonction du temps de cohérence du laser

À partir de la session de mesure de la figure 4.19, il est également possible de calculer la fenêtre temporelle de coalescence pour chaque valeur du temps de cohérence du laser. Le résultat est tracé sur la figure 4.21. En passant de $T_L = 9{,}8$ ns à 43,8 ns, la FTC mesurée augmente de $2{,}5 \pm 0{,}4$ ns à $7{,}4 \pm 0{,}4$ ns. La dépendance est essentiellement linéaire avec une déviation sur la mesure à $T_L = 43{,}8$ ns qui est aux limites de validité du modèle comme nous l'avons vu plus haut. Cette dépendance linéaire s'explique par le fait que la FTC à basse puissance est principalement déterminée par le temps de cohérence du laser T_L, qui définit une très grande part de l'aire sous la courbe de visibilité.

En conclusion, dans le régime de diffusion Rayleigh, la FTC est essentiellement déterminée par le temps de cohérence du laser. Travailler dans ce régime permet donc d'améliorer considérablement les propriétés de cohérence et d'indiscernabilité des photons émis par la boîte quantique, mais aussi de les modifier en contrôlant la cohérence du laser d'excitation.

4.3.4 Ajout d'un fond parasite cohérent

Dans les mesures étudiées dans cette section, nous avons utilisé des valeurs légèrement différentes de T_1 et T_2, soit 0,3 et 0,52 ns ici, au lieu de 0,37 et 0,54 ns

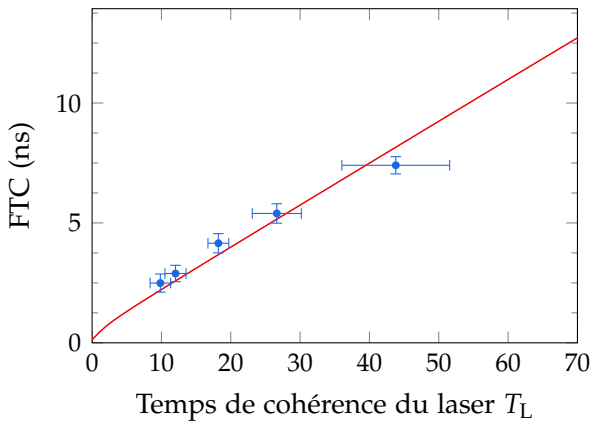


FIGURE 4.21 — Fenêtre temporelle de coalescence à basse puissance, en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation.

comme estimé au chapitre 3. De plus, nous avons remarqué dans le paragraphe 4.3.3 que le modèle théorique semblait sous-estimer l'amplitude de la composante longue liée à la diffusion élastique du laser.

Le modèle théorique tel qu'il est à ce stade n'explique pas complètement les mesures. Nous avons vu aussi au chapitre 3 que les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ ne pouvaient pas toujours être ajustées sans prendre en compte un fond parasite de diffusion élastique du laser, supplémentaire à la diffusion élastique naturelle du système à deux niveaux excité à basse puissance.

Considérons que le champ émis par la boîte quantique est accompagné par un champ cohérent parasite qui provient du laser diffusé élastiquement. De la même manière que nous l'avons fait pour $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$, cela revient à remplacer $E^{(+)}$ par $E^{(+)} + \alpha$ dans le développement de la figure 4.7. Comme précédemment, ce champ α devient une constante complexe $\tilde{\alpha}$ dans le référentiel tournant du laser, ce changement de référentiel comprenant toutes les fluctuations d'énergie.

Au final, l'ajout du champ parasite revient exactement à remplacer dans (4.2.16) les corrélateurs $G^{(1)}(\tau)$ et $G^{(2)}(\tau)$ (ou leur version normalisée) par leur version comprenant le champ parasite, c'est-à-dire respectivement les expressions (3.2.12) et (3.3.17). Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.4, certains corrélateurs présents dans le développement de $G^{(2)}(\tau)$ avec le champ parasite seront calculés dans le chapitre 5, et nous estimerons l'effet du champ parasite sur $g^{(2X)}(\tau)$ dans ce chapitre également.

Conclusion du chapitre

Nous avons donc modélisé et mesuré le comportement de la fonction d'autocorrélation de l'intensité $g^{(2X)}(\tau)$ à la sortie de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel, et de la courbe de visibilité des interférences à deux photons $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$, avec une source unique, la boîte QDIII-bis. L'interféromètre de Hong–Ou–Mandel est constitué d'un interféromètre de Mach–Zehnder fortement déséquilibré, avec un retard supérieur au temps de cohérence de la source qui permet de rendre les deux faisceaux incidents sur la séparatrice de sortie parfaitement indépendants. En effectuant une mesure de corrélations entre les deux sorties de l'interféromètre, nous pouvons retrouver un creux d'anticoïncidences, signature du phénomène de coalescence qui prévoit que des photons indiscernables doivent quitter la séparatrice par la même sortie.

Or deux photons ayant le même mode spatial et la même polarisation, détectés parfaitement simultanément, sont toujours indiscernables, ce qui signifie que la courbe de visibilité des interférences à deux photons $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$ doit toujours atteindre 1 à $\tau = 0$ dans un cas idéal, même avec des sources très peu cohérentes entre elles. Seul le manque de résolution temporelle du système de détection est alors responsable de la perte de visibilité à $\tau = 0$, car le pic de visibilité est d'autant plus fin que les sources sont peu cohérentes entre elles. Le comportement de $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$ est donc mal décrit par la valeur de $V_{\mathrm{HOM}}(0)$ étant donné qu'elle est ne rend compte de la largeur de $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$ qu'à travers la convolution de $g^{(2X)}(\tau)$ par la réponse instrumentale du système de détection. De même la largeur à mi-hauteur de la courbe de visibilité ne peut rendre compte de plusieurs composantes ayant des temps et des poids différents, ce qui est le cas de $V_{\mathrm{HOM}}(\tau)$.

Grâce à la fenêtre temporelle de coalescence, nous avons pu étudier quantitativement l'effet du temps de cohérence du laser sur les mesures d'indiscernabilité. Cela a permis également de rendre compte de l'apparition de la composante de diffusion élastique lorsque la puissance d'excitation devient faible devant la puissance de saturation. Cette caractéristique permet donc d'estimer de manière quantitative le retard moyen entre les détections au-delà duquel la coalescence ne sera plus observée.

Les ajustements théoriques effectués sur les mesures d'indiscernabilité ne sont cependant pas parfaitement satisfaisants : comme nous l'avons vu, les temps caractéristiques T_1 et T_2 utilisés pour la boîte QDIII-bis sont légèrement inférieurs aux temps estimés dans le chapitre 3. Nous allons voir au chapitre suivant un modèle théorique comprenant un champ laser parasite, qui permettra d'ajuster les courbes d'indiscernabilité de manière très satisfaisante en utilisant les temps caractéristiques estimés de manière rigoureuse au chapitre 3.

5 Calcul général des corrélateurs et effet du fond parasite

Pour les mesures de $g^{(1)}(\tau)$, nous avons établi au chapitre 3 que l'ajout d'un champ parasite dû au laser d'excitation est indispensable pour reproduire théoriquement les données expérimentales pour une boîte quantique sous excitation résonnante. Ce fond parasite est inhérent à l'excitation résonnante dans un milieu solide susceptible de contenir des diffuseurs dus à des défauts ou des impuretés. Nous nous en sommes précédemment abstraits pour décrire les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$ en maintenant une puissance d'excitation faible et en ajustant parfois les paramètres du modèle, mais cela n'est pas satisfaisant : certains comportements à haute puissance, avec un fond parasite fort, ne peuvent être prévus par le seul système à deux niveaux.

La prise en compte du fond parasite dans notre modèle théorique et la consécutive confrontation aux mesures est l'objectif de ce chapitre. Il est pour cela nécessaire de calculer des corrélateurs non-usuels comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.4. Une méthode générale pour calculer un corrélateur quelconque du champ émis par un système à deux niveaux est introduite, ce qui nous permet d'estimer $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$ en présence d'un fond laser parasite.

Nous analysons le comportement du modèle ainsi complété pour tous les régimes de puissance et les expliquons qualitativement, que ce soit pour $g^{(2)}(\tau)$ ou pour $g^{(2X)}(\tau)$. Nous constatons que les termes additionnels apparus dans les expressions de ces corrélateurs peuvent en effet causer, dans certaines conditions, un comportement de groupement des photons que nous avons observé expérimentalement (cf. figure 3.8). Ce phénomène est attribué à des interférences entre l'émission de photoluminescence et le champ parasite. La description des courbes expérimentales s'en trouve considérablement améliorée, en utilisant les temps caractéristiques T_1 et T_2 établis rigoureusement au chapitre 3.

5.1 Méthode générale de calcul d'un corrélateur à l'aide des superopérateurs . . 148

5.2 Expression de $g^{(2)}(\tau)$ avec fond laser 153

5.3 Mesures d'indiscernabilité en présence d'un fond laser parasite 164

Conclusion du chapitre 173

5.1 Méthode générale de calcul d'un corrélateur à l'aide des superopérateurs

Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.4, l'ajout d'un champ parasite cohérent nous confronte à des corrélateurs que nous n'avons pas encore pu calculer, par exemple un corrélateur à trois champs de la forme $\langle E_-(t)\, E_-(t+\tau)\, E_+(t)\rangle$. Il est donc très utile de disposer d'une méthode générale permettant de calculer un corrélateur quelconque de manière systématique, ce que nous nous proposons de faire ici en utilisant le formalisme des superopérateurs.

5.1.1 Équation d'évolution

Tout d'abord, dans ce formalisme, le superopérateur décrivant les interactions et l'évolution du « vecteur » matrice densité $\underline{\rho}$ est appelé liouvillien ; il s'agit d'une matrice, notée $\underline{\mathcal{L}}$. Dans le formalisme des superopérateurs, l'équation de Liouville s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar}[H,\rho] \qquad \leftrightarrow \qquad \frac{\partial \underline{\rho}}{\partial t} = -\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\underline{\mathcal{L}}\underline{\rho} \tag{5.1.1}$$

La matrice densité ρ décrivant l'état d'un système à deux niveaux correspond directement au vecteur $\underline{\rho}$ de la manière suivante :

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{bmatrix} \qquad \leftrightarrow \qquad \underline{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{ee} \\ \rho_{eg} \\ \rho_{ge} \\ \rho_{gg} \end{pmatrix} \tag{5.1.2}$$

Dans le cas d'un système à deux niveaux excité à la résonance par un laser fluctuant, a priori, $\underline{\mathcal{L}}$ dépend du temps. On peut donc se placer dans le référentiel tournant du laser et utiliser les équations de Bloch optiques pour construire le liouvillien. Il est assez simple d'établir les équations suivantes à partir de 1.4.21a et 1.4.21b (p. 34) :

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{\rho}_{ee}}{\mathrm{d}t} = -\frac{1}{T_1}\tilde{\rho}_{ee} - \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{eg} + \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{ge} \tag{5.1.3a}$$

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{\rho}_{eg}}{\mathrm{d}t} = -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{ee} + \left(\mathrm{i}\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{eg} + \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{gg} \tag{5.1.3b}$$

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{\rho}_{ge}}{\mathrm{d}t} = \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{ee} + \left(-\mathrm{i}\Delta - \frac{1}{T_2}\right)\tilde{\rho}_{ge} - \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{gg} \tag{5.1.3c}$$

$$\frac{\mathrm{d}\tilde{\rho}_{gg}}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{T_1}\tilde{\rho}_{ee} + \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{eg} - \frac{\mathrm{i}\Omega}{2}\tilde{\rho}_{ge} \tag{5.1.3d}$$

Dans ce cas, d'après (5.1.1), le liouvillien s'écrit :

$$-\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\underline{\tilde{\mathcal{L}}} = \begin{bmatrix} -\frac{1}{T_1} & -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & \frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & 0 \\ -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & \mathrm{i}\Delta - \frac{1}{T_2} & 0 & \frac{\mathrm{i}\Omega}{2} \\ \frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & 0 & -\mathrm{i}\Delta - \frac{1}{T_2} & -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2} \\ \frac{1}{T_1} & \frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & -\frac{\mathrm{i}\Omega}{2} & 0 \end{bmatrix} \tag{5.1.4}$$

La matrice densité en régime stationnaire $\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}$ est alors la solution de l'équation :

$$0 = \underline{\tilde{\mathcal{L}}}\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}} \tag{5.1.5}$$

Il s'agira donc du vecteur propre associé à la valeur propre nulle du liouvillien.

5.1.2 Diagonalisation du liouvillien

La matrice de l'expression 5.1.4 peut être diagonalisée en trouvant les matrices de passage $[r_i]$ et $[r_i]^{-1}$ telles que :

$$-\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\underline{\tilde{\mathcal{L}}} = [r_i] \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \omega_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \omega_3 \end{bmatrix} [r_i]^{-1} = [r_i]\ \mathrm{diag}\,[\omega_i]\ \ [r_i]^{-1} \tag{5.1.6}$$

où r_i sont les vecteurs propres de $-\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\underline{\tilde{\mathcal{L}}}$ associés aux valeurs propres ω_i, avec $\omega_0 = 0$.

L'inversion de la matrice de passage $[r_i]$ peut toutefois être assez longue, et il sera plus judicieux de diagonaliser la transposée du liouvillien ${}^t\underline{\mathcal{L}}$ dont les vecteurs propres seront notés O_i, auquel cas on aura :

$$-\frac{\mathrm{i}}{\hbar}\underline{\tilde{\mathcal{L}}} = [\tilde{\rho}_i]\ \mathrm{diag}\,[\omega_i]\ \ {}^t[O_i] \tag{5.1.7}$$

où $\tilde{\rho}_i = \frac{r_i}{r_i \cdot O_i}$ ($\square \cdot \square$ désignant ici un produit scalaire). Cette renormalisation des vecteurs propres r_i permet de s'assurer que $[r_i]\,{}^t[O_i] = \mathrm{Id}$ (identité).

5.1.3 Superopérateur d'évolution

On définit le superopérateur d'évolution $\underline{U}(t, t_0)$ qui lie la matrice densité au temps t à la matrice de départ au temps t_0. On a donc :

$$\underline{\rho}(t) = \underline{U}(t, t_0)\underline{\rho}(t_0) \tag{5.1.8}$$

Connaître le superopérateur d'évolution permet donc de calculer l'état de la matrice densité à n'importe quel temps, connaissant la matrice densité de départ, qui sera la matrice densité en régime stationnaire.

En utilisant la forme diagonalisée du liouvillien (5.1.7) dans l'équation de Liouville 5.1.1, le superopérateur d'évolution s'écrit :

$$\underline{\tilde{U}}(t) = [\tilde{\rho}_i]\ \mathrm{diag}\left[\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_i t}\right]\ \ {}^t[O_i] \tag{5.1.9}$$

5.1.4 Corrélateur

Nous avons vu au paragraphe 3.3.5 (p. 94) que mesurer une fonction de corrélation comme, par exemple, $g^{(2)}(t_1, t_2)$ revient à mesurer le taux $w_2(t_1, t_2)$ de comptage joint des photons aux instants t_1 et t_2. Icelui s'exprime :

$$w_2(t_1, t_2) = \sum_f \left| \langle f | T\, E^{(+)}(t_2)\, E^{(+)}(t_1) | i \rangle \right|^2 \tag{5.1.10}$$

Du fait du principe de causalité, il est nécessaire que le premier champ appliqué à l'état initial $|i\rangle$ soit le premier mesuré. Pour s'en assurer sans supposer d'ordre préalable à t_1 et t_2, on applique l'opérateur d'ordonnancement des temps T, tel que :

$$T\, E^{(+)}(t_2)\, E^{(+)}(t_1) = \begin{cases} E^{(+)}(t_2)\, E^{(+)}(t_1) & \text{si } t_2 \geqslant t_1, \\ E^{(+)}(t_1)\, E^{(+)}(t_2) & \text{si } t_2 < t_1. \end{cases} \tag{5.1.11}$$

En sommant sur l'ensemble des états initiaux et finaux, suivant le raisonnement du paragraphe 3.3.5, on montre que :

$$w_2(t_1, t_2) = \left\langle E^{(-)}(t_1)\, E^{(-)}(t_2)\, T^\dagger T\, E^{(+)}(t_2)\, E^{(+)}(t_1) \right\rangle \tag{5.1.12}$$

$$= \mathrm{Tr}\left[E^{(-)}(t_1)\, E^{(-)}(t_2)\, T^\dagger T\, E^{(+)}(t_2)\, E^{(+)}(t_1)\, \rho_{\mathrm{st}} \right] \tag{5.1.13}$$

où ρ est la matrice densité du système à deux niveaux dans l'état stationnaire, supposée décrire l'état du système avant la mesure.

On peut écrire l'expression ci-dessus comme :

$$w_2(t_1, t_2) = \mathrm{Tr}\left[E^{(-)}(t_\alpha)\, E^{(-)}(t_\beta)\, E^{(+)}(t_\beta)\, E^{(+)}(t_\alpha)\, \rho_{\mathrm{st}} \right] \tag{5.1.14}$$

où t_α et t_β correspondent à t_1 et t_2 tel que $t_\alpha \leqslant t_\beta$.

Afin d'appliquer les opérateurs dans l'ordre des temps, c'est-à-dire les champs à t_α d'abord, puis les champs à t_β, on peut effectuer une permutation circulaire, qui conserve la trace. Ainsi :

$$w_2(t_1, t_2) = \mathrm{Tr}\left[E^{(+)}(t_\beta)\, E^{(+)}(t_\alpha)\, \rho_{\mathrm{st}}\, E^{(-)}(t_\alpha)\, E^{(-)}(t_\beta) \right] \tag{5.1.15}$$

où l'on appliquera les opérateurs dans l'ordre des temps croissants, par exemple :

$$w_2(t_1, t_2) = \mathrm{Tr}\left\{ \left[E^{(+)}(t_\beta)\, \left(\left(E^{(+)}(t_\alpha)\, \rho_{\mathrm{st}} \right) E^{(-)}(t_\alpha) \right) \right] E^{(-)}(t_\beta) \right\} \tag{5.1.16}$$

L'un des avantages du formalisme des superopérateurs à ce stade est qu'il permet de simplifier ces opérations en appliquant les superopérateurs sous leur forme « appliqué à gauche » ou « appliqué à droite » au vecteur matrice densité. Concrètement, l'exemple de $w_2(t_1, t_2)$ ci-dessus devient :

$$w_2(t_1, t_2) = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{E}_b^{(-)}(t_\beta)\, \underline{E}_a^{(+)}(t_\beta)\, \underline{E}_b^{(-)}(t_\alpha)\, \underline{E}_a^{(+)}(t_\alpha)\, \underline{\rho}_{\mathrm{st}} \right] \tag{5.1.17}$$

où $\underline{\mathrm{Tr}}$ désigne la supertrace, qui correspond à la trace usuelle dans l'espace de Hilbert en sommant le premier et le dernier terme du vecteur matrice densité ; les indices a et b distinguent les situations où l'opérateur est appliqué respectivement à gauche ou à droite, tel que :

$$\underline{E}_a \underline{\rho} \quad \leftrightarrow \quad E_a \rho \tag{5.1.18}$$

$$\underline{E}_b \underline{\rho} \quad \leftrightarrow \quad \rho E_b \tag{5.1.19}$$

Ainsi, les permutations ne sont plus nécessaires et on change simplement la forme du superopérateur entre sa forme a (appliqué à gauche) et sa forme b (appliqué à droite).

On pourra remarquer que les champs de fréquence négative $E^{(-)}$ seront toujours appliqués à droite, tandis que les champs $E^{(+)}$ seront appliqués à gauche. On peut ainsi définir une forme générale de corrélateur :

$$C = \left\langle O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m})\, T^\dagger T\, O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n}) \right\rangle \tag{5.1.20}$$

$$= \mathrm{Tr}\left[O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m})\, T^\dagger T\, O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n})\, \rho \right] \tag{5.1.21}$$

$$= \mathrm{Tr}\left[T\, O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n})\, \rho\, O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m})\, T^\dagger \right] \tag{5.1.22}$$

où O désigne une observable.

Ainsi les opérateurs a et b agissent bien respectivement à gauche et à droite de la matrice densité ρ, et ils devront être appliqués à ρ dans l'ordre des temps t_i. En passant au formalisme des superopérateurs, l'expression ci-dessous devient :

$$C = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{T}\, \underline{O}_{b_1}(t_{b_1}) \dots \underline{O}_{b_m}(t_{b_m})\, \underline{O}_{a_1}(t_{a_1}) \dots \underline{O}_{a_n}(t_{a_n})\, \underline{\rho} \right] \tag{5.1.23}$$

$$= \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{O}_{\pi_N}(t_{\pi_N}) \dots \underline{O}_{\pi_1}(t_{\pi_1})\, \underline{\rho} \right] \tag{5.1.24}$$

où $\pi_1, \dots, \pi_N$ sont les indices $a_1, \dots, a_n, b_1, \dots, b_m$ ordonnés tels que $t_{\pi_1} \leqslant \dots \leqslant t_{\pi_N}$.

On peut finalement utiliser le superopérateur d'évolution pour écrire :

$$C = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{O}_{\pi_N} \underline{U}(t_{\pi_N}, t_{\pi_{N-1}}) \underline{O}_{\pi_{N-1}} \dots \underline{U}(t_{\pi_2}, t_{\pi_1}) \underline{O}_{\pi_1}\, \underline{\rho} \right] \tag{5.1.25}$$

5.1.5 Opérateurs dipolaires

Dans la suite nous nous intéresserons à des corrélations du champ émis par la boîte quantique. On rappelle que d'après (1.4.27), on a :

$$E^{(+)}(t) \propto S_-(t) \tag{5.1.26}$$

où les opérateurs dipolaires peuvent s'écrire à l'instant t, dans le point de vue de Schrödinger :

$$S_- = |g\rangle\langle e| \tag{5.1.27}$$

$$S_+ = |e\rangle\langle g| \tag{5.1.28}$$

Afin de trouver leur expression, on utilisera le fait que la matrice densité ρ est telle que :

$$\rho = \sum_{i,j\in\{e,g\}} \rho_{ij}|i\rangle\langle j| \tag{5.1.29}$$

Ainsi il est possible de calculer $S_-\rho$ et ρS_+ :

$$\begin{aligned} S_-\rho &= \sum_{i,j\in\{e,g\}} \rho_{ij}|g\rangle\langle e|i\rangle\langle j| \\ &= \rho_{ee}|g\rangle\langle e| + \rho_{eg}|g\rangle\langle g| \end{aligned} \tag{5.1.30}$$

De même :

$$\rho S_+ = \rho_{ge}|e\rangle\langle e| + \rho_{gg}|e\rangle\langle g| \tag{5.1.31}$$

Les superopérateurs associés à S_- et S_+ doivent alors vérifier :

$$\underline{S}_{a,-}\underline{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{ge} \\ \rho_{ee} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \underline{S}_{b,+}\underline{\rho} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{ee} \\ \rho_{eg} \end{pmatrix} \tag{5.1.32}$$

Et on établit finalement l'expression de $\underline{S}_{a,-}$ et $\underline{S}_{b,+}$:

$$\underline{S}_{a,-} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \underline{S}_{b,+} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \tag{5.1.33}$$

Les opérateurs S_- s'appliquant toujours à gauche et les opérateurs S_+ toujours à droite, on ne précisera plus l'indice a ou b. De plus, comme le commutateur $[S_-, S_+] = 0$, l'ordre des opérateurs appliqués à un même temps n'importe pas.

5.1.6 Corrélateurs usuels

À l'aide de la méthode exposée au paragraphe 5.1.4, on peut construire les fonctions d'autocorrélation usuelles, à savoir dans un premier temps $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ et $\tilde{G}^{(2)}(\tau)$, exprimées dans le référentiel tournant du laser :

$$\tilde{G}^{(1)}(\tau) = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{S}_-\,\underline{\tilde{U}}(\tau)\,\underline{S}_+\,\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}\right] \tag{5.1.34}$$

$$\tilde{G}^{(2)}(\tau) = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{S}_+\,\underline{S}_-\,\underline{\tilde{U}}(\tau)\,\underline{S}_+\,\underline{S}_-\,\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}\right] \tag{5.1.35}$$

Comme expliqué aux paragraphes 3.2.1 (p. 78) et 3.3.2 (p. 90), si l'on passe maintenant dans le référentiel du laboratoire :

$$G^{(1)}(\tau) = \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_{\mathrm{L}}}}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}\tau}\,\tilde{G}^{(1)}(\tau) \tag{5.1.36}$$

$$G^{(2)}(\tau) = \tilde{G}^{(2)}(\tau) \tag{5.1.37}$$

et leurs expressions normalisées sont :

$$g^{(1)}(\tau) = \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_L}}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_L\tau}\,\frac{\tilde{G}^{(1)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)} \tag{5.1.38}$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\tilde{G}^{(2)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)^2} \tag{5.1.39}$$

Ces valeurs seront calculées en diagonalisant numériquement le liouvillien. Il est également possible d'utiliser un logiciel de calcul formel pour vérifier qu'on obtient les mêmes expressions que celles obtenues par des méthodes classiques utilisant le théorème de régression quantique. La méthode et les expressions obtenues sont toutefois très lourdes et nous ne les traiterons pas ici.

5.2 Expression de $g^{(2)}(\tau)$ avec fond laser

Dans le développement donné par l'expression (3.3.17) établie au paragraphe 3.3.4 (p. 92), certains corrélateurs n'avaient pas d'expression analytique simple à calculer. En utilisant un calcul numérique et le formalisme des super-opérateurs, ces corrélateurs peuvent à présent être calculés :

$$\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{S}_+\,\underline{S}_-\,\underline{\tilde{U}}(\tau)\,\underline{S}_+\,\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}\right] \tag{5.2.1}$$

$$\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t)\right\rangle = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{S}_+\,\underline{\tilde{U}}(\tau)\,\underline{S}_-\,\underline{S}_+\,\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}\right] \tag{5.2.2}$$

$$\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\right\rangle = \underline{\mathrm{Tr}}\left[\underline{S}_+\,\underline{\tilde{U}}(\tau)\,\underline{S}_+\,\underline{\tilde{\rho}}_{\mathrm{st}}\right] \tag{5.2.3}$$

Dans cette section, nous allons commencer par confronter le modèle théorique, c'est-à-dire l'expression (3.3.17) ainsi complétée, aux mesures de $g^{(2)}(\tau)$, en particulier dans le cas des hautes puissances d'excitation. En effet, nous avons vu au paragraphe 3.3.4, sur la figure 3.8, que la statistique de dégroupement des photons attendue pour la photoluminescence d'une boîte quantique peut s'inverser à haute puissance, où apparaît un pic caractéristique du groupement des photons. Ce phénomène ne peut être décrit en ne considérant que l'émission d'un système à deux niveaux, et nous allons voir que l'ajout d'un champ parasite cohérent dans le modèle permet d'expliquer le comportement mesuré. Nous analyserons par la suite le rôle de chacun des termes de l'expression (3.3.17) pour comprendre l'effet du champ parasite sur $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation.

5.2.1 Modèle du diffuseur élastique

Ce modèle a été décrit brièvement pour la prise en compte du fond parasite dans $g^{(1)}(\tau)$ à la section 3.2. Comme nous allons ici nous pencher plus en détails sur les

effets de ce fond parasite dans $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$, commençons par rappeler ses caractéristiques.

Comme représenté sur la figure 5.1, on considère une boîte quantique sous excitation résonnante, où le laser d'excitation est injecté par la tranche de l'échantillon, comme dans notre montage expérimental (cf. figure 2.6). À proximité de la boîte quantique, un unique diffuseur élastique et linéaire émet un champ parasite vers le système de détection.

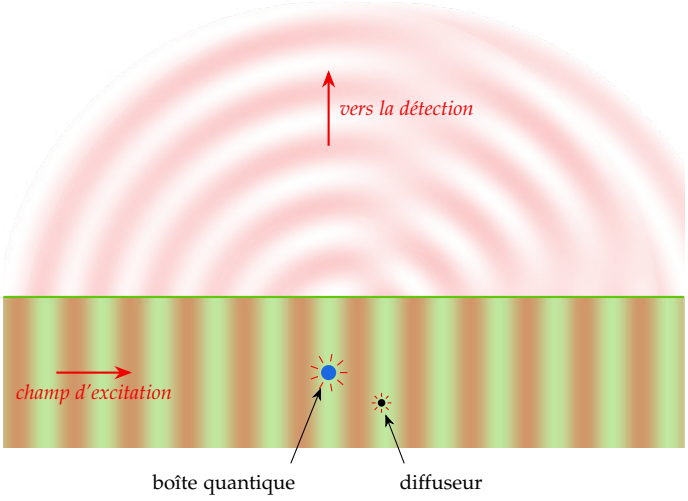


FIGURE 5.1 — Modèle du diffuseur élastique du champ parasite.

Ce diffuseur émet donc un champ α, d'amplitude $\tilde{\alpha}$, parfaitement cohérent avec le laser (diffusion élastique) et proportionnel au champ d'excitation (diffusion linéaire). Comme le paramètre de saturation de la boîte quantique, noté s_0, est proportionnel à l'intensité d'excitation, on en déduit que :

$$\tilde{\alpha} \propto \sqrt{s_0} \tag{5.2.4}$$

Ainsi, on quantifiera le champ parasite dû au diffuseur par la quantité $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$. De plus, comme nous l'avons précisé au paragraphe 3.2.6, cette quantité est normalisée par rapport à l'intensité émise par la boîte quantique à basse puissance. $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ est alors directement exprimée comme un pourcentage du champ de photoluminescence dans le régime de diffusion Rayleigh. Le pourcentage relatif à l'intensité sera donc $\tilde{\alpha}^2/s_0$.

5.2.2 Confrontation aux mesures

Les précédentes mesures de $g^{(2)}(\tau)$ du paragraphe 3.3.7 avaient été limitées en puissance d'excitation afin de ne pas être affectées par le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

Pour confronter aux mesures le nouveau modèle prenant en compte le fond parasite, l'expérience du paragraphe 3.3.7 a été répétée en explorant également les très hautes puissances — pour chaque puissance d'excitation, nous avons mesuré $g^{(2)}(\tau)$. Pour la session de mesure présentée sur la figure 5.2, la puissance d'excitation varie d'une valeur inférieure à la saturation ($s_0 = 0{,}48$) jusqu'à une valeur égale à 150 fois le niveau de saturation.

Lorsque la puissance est inférieure à $s_0 = 10{,}5$, on observe un phénomène de dégroupement des photons, soit $g^{(2)}(0) < 1$. Ainsi, pour $s_0 = 0{,}48$, on mesure $g^{(2)}(0) = 0{,}35 \pm 0{,}02 < 0{,}5$. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, la boîte quantique est un émetteur de photons uniques, observer un dégroupement des photons est donc logique. En revanche, au-delà de $s_0 = 27{,}1$, les photons apparaissent groupés autour de $\tau = 0$, c'est-à-dire qu'on mesure $g^{(2)}(0) > 1$. À $s_0 = 151$, on obtient ainsi $g^{(2)}(0) = 1{,}11 \pm 0{,}01$. Il y a donc inversion du comportement observé par notre système de détection : à basse puissance, les photons sont dégroupés, à haute puissance, ils sont groupés.

A priori, avec notre modèle de fond laser parasite, les seules composantes présentes sont celles de la photoluminescence de la boîte (une émission de photons uniques dégroupés) et l'émission poissonnienne du laser (pour laquelle $g^{(2)}(\tau) = 1$ pour tout τ). Une simple somme de ces deux composantes ne peut expliquer le groupement que l'on mesure à haute puissance, il s'agit donc nécessairement d'un phénomène d'interférences — ce qui est pris en compte avec notre modèle.

Les courbes rouges continues sont les ajustements théoriques prenant en compte le fond laser avec le modèle développé dans ce chapitre. Ces ajustements ont été faits uniquement sur la valeur de la puissance de saturation et la constante complexe $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ décrivant le champ parasite. Pour cette session de mesure, on estime :

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = (0{,}058 \pm 0{,}005) \cdot \exp\left[\mathrm{i}\,(0{,}99 \pm 0{,}06)\right] \tag{5.2.5}$$

Cette amplitude correspond à une intensité de 0,34% de l'intensité de photoluminescence. La valeur de ce paramètre sera discutée plus en détails au paragraphe 5.2.4 (p. 162).

Les courbes théoriques s'ajustent fidèlement aux courbes expérimentales, et parviennent en particulier à reproduire le groupement des photons à haute puissance. À titre de comparaison, les courbes vertes pointillées sont des courbes tracées dans les mêmes conditions, mais sans le fond laser parasite. Celles-ci ne présentent jamais de groupement des photons : par exemple à $s_0 = 151$, la théorie prévoit $g^{(2)}(0) = 0{,}99$ alors que l'on mesure $g^{(2)}(0) = 1{,}11 \pm 0{,}01$. On rappelle que le fait que $g^{(2)}(0) > 0$ sans fond laser est uniquement lié à la convolution de $g^{(2)}(\tau)$ par la réponse instrumentale.

Il est important de noter un changement également à basse puissance, puisque pour $s_0 = 0{,}48$, on mesure $g^{(2)}(0) = 0{,}35 \pm 0{,}02$ alors qu'en l'absence de fond laser la théorie prévoit 0,27. Comme nous le verrons au paragraphe suivant, certains

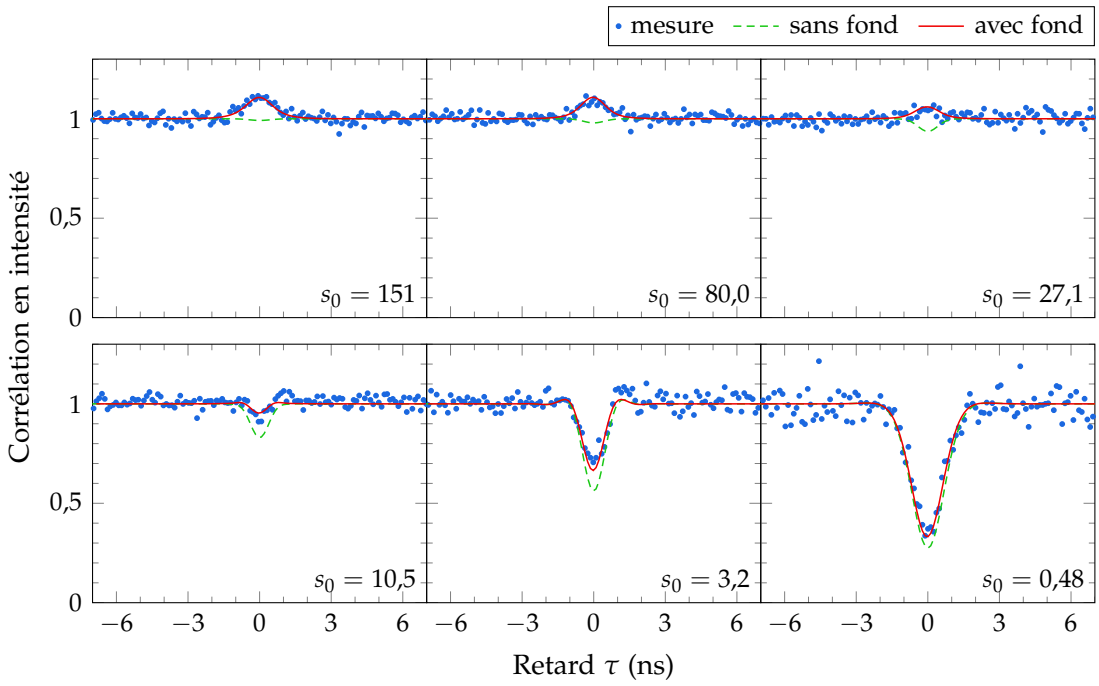


FIGURE 5.2 — Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, incluant des mesures à très haute puissance.

termes parasites subsistent à la limite des faibles puissances. Tout ceci pourrait conduire à remettre en question les conclusions du chapitre 3, où les temps T_1 et T_2 ont été estimés en ajustant $g^{(2)}(\tau)$ sans fond laser. Toutefois, l'effet du fond est essentiellement ressenti sur la profondeur du creux de dégroupement et la valeur de $g^{(2)}(0)$, mais a peu d'effet sur la largeur de la courbe, qui permet d'évaluer les temps caractéristiques. Pour la mesure à $s_0 = 0{,}48$, la largeur à mi-hauteur du creux de dégroupement est de 1,6 ns dans les deux cas*. Nous négligerons donc l'effet du fond laser sur les temps caractéristiques. Dans les courbes théoriques présentées ici, nous utilisons les valeurs de T_1 et T_2 évaluées au chapitre 3, c'est-à-dire $T_1 = 0{,}37$ ns et $T_2 = 0{,}54$ ns, qui aboutissent à des ajustements très satisfaisants. Pour la fin de ce chapitre, en partie consacrée aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, nous étudierons l'effet de la prise en compte du fond laser en utilisant également ces temps caractéristiques.

5.2.3 Analyse du comportement des termes parasites

Le développement de $G^{(2)}(\tau)$ en présence d'un champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation est donné par (3.3.17) (p. 93). Ce résultat comporte

* L'ajustement sans fond laser du chapitre 3 rattrape la déformation due au fond parasite en changeant l'estimation de la puissance de saturation. Cela conduit seulement à une surestimation du paramètre de saturation.

huit termes qui dépendent différemment de la puissance d'excitation. Nous nous intéresserons ici à la description de ces termes et à la façon dont ils participent au comportement de $g^{(2)}(\tau)$ observé dans les mesures, puis nous verrons comment ils évoluent en théorie lorsque l'on change la puissance d'excitation.

Rôle de chaque terme dans $g^{(2)}(\tau)$

L'expression (3.3.17) est rappelée ici (numérotée (5.2.6)) et la figure 5.3 montre la dépendance temporelle des différents termes pour une puissance d'excitation correspondant à $s_0 = 10$. Chaque terme numéroté de l'expression (5.2.6) a été tracé en fonction de τ, et il est normalisé comme $g^{(2)}(\tau)$, c'est-à-dire que l'on divise la valeur brute par I^2 où I représente l'intensité totale (photoluminescence + diffusion parasite). En faisant la somme de ces huit courbes, on obtient $g^{(2)}(\tau)$. Les graphes de la ligne inférieure du tableau sont simplement un agrandissement de ceux de la ligne supérieure, afin de mieux distinguer les différentes contributions. La colonne de gauche correspond à des courbes théoriques non convoluées et celle de droite à des courbes convoluées par la réponse instrumentale du système de détection. On aura ainsi une idée plus concrète de l'effet des différents termes sur une mesure de $g^{(2)}(\tau)$. Les temps caractéristiques utilisés sont ceux de la boîte QDIII-bis, c'est-à-dire $T_1 = 0{,}37$ ns et $T_2 = 0{,}54$ ns. La constante complexe $\tilde{\alpha}$ représentant le champ laser parasite vaut ici $0{,}058 \cdot \exp(\mathrm{i}\,0{,}99) \cdot \sqrt{s_0}$, d'après (5.2.5), valeur établie au paragraphe précédent en se basant sur les mesures expérimentales de $g^{(2)}(\tau)$.

Commençons par nous intéresser à la colonne de gauche de la figure 5.3, où les courbes théoriques sont tracées sans être convoluées par la réponse instrumentale. À cette puissance d'excitation ($s_0 = 10$), l'essentiel de $g^{(2)}(\tau)$ est dû au terme **1**, c'est-à-dire à $G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)$ qui est la fonction d'autocorrélation de l'intensité émise par la boîte quantique, sans champ parasite. Les termes additionnels les plus importants sont les termes **5** et **6** qui correspondent à des corrélateurs champ–intensité, le terme **3** qui est une constante, produit des intensités de la boîte et du laser parasite, et enfin le terme **4** qui correspond au produit des $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ pour la boîte et le laser parasite. Si l'on s'intéresse plus particulièrement à la valeur à $\tau = 0$, l'ensemble des termes précédents s'annule, à l'exception de **3** et **4**. En particulier, **4** présente un pic autour de $\tau = 0$ caractéristique de $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$, qui est associé à un comportement de groupement des photons. Les termes **2**, **7** et **8** sont très petits. Seul **2** jouera un rôle à très haute puissance (ce que nous verrons au paragraphe suivant) puisqu'il s'agit de $|\tilde{\alpha}|^4$, soit $G^{(2)}(\tau)$ pour l'émission du laser.

Si l'on étudie à présent les courbes convoluées par la réponse instrumentale (colonne de droite de la figure 5.3), on constate que le comportement des courbes autour de $\tau = 0$ est fortement affecté. D'abord, l'amplitude du creux de dégroupement dû au terme **1**, c'est-à-dire à $G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)$, a énormément diminué : alors que cette amplitude valait 0,8 pour la courbe sans convolution, elle n'est plus que de 0,14 après

$$G^{(2)}(\tau) \propto \underset{\mathbf{1}}{G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)} + \underset{\mathbf{2}}{|\tilde{\alpha}|^4} + \underset{\mathbf{3}}{2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\mathrm{QD}}} + \Big[\underset{\mathbf{4}}{|\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau)} + \underset{\mathbf{5}}{\tilde{\alpha}\Big\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t+\tau)\Big\rangle} + \underset{\mathbf{6}}{\tilde{\alpha}\Big\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t)\Big\rangle} + \underset{\mathbf{7}}{\tilde{\alpha}^2\Big\langle \tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_+(t)\Big\rangle} + \underset{\mathbf{8}}{2\tilde{\alpha}|\tilde{\alpha}|^2\Big\langle \tilde{S}_+(t)\Big\rangle} + \text{c.c.}\Big] \tag{5.2.6}$$

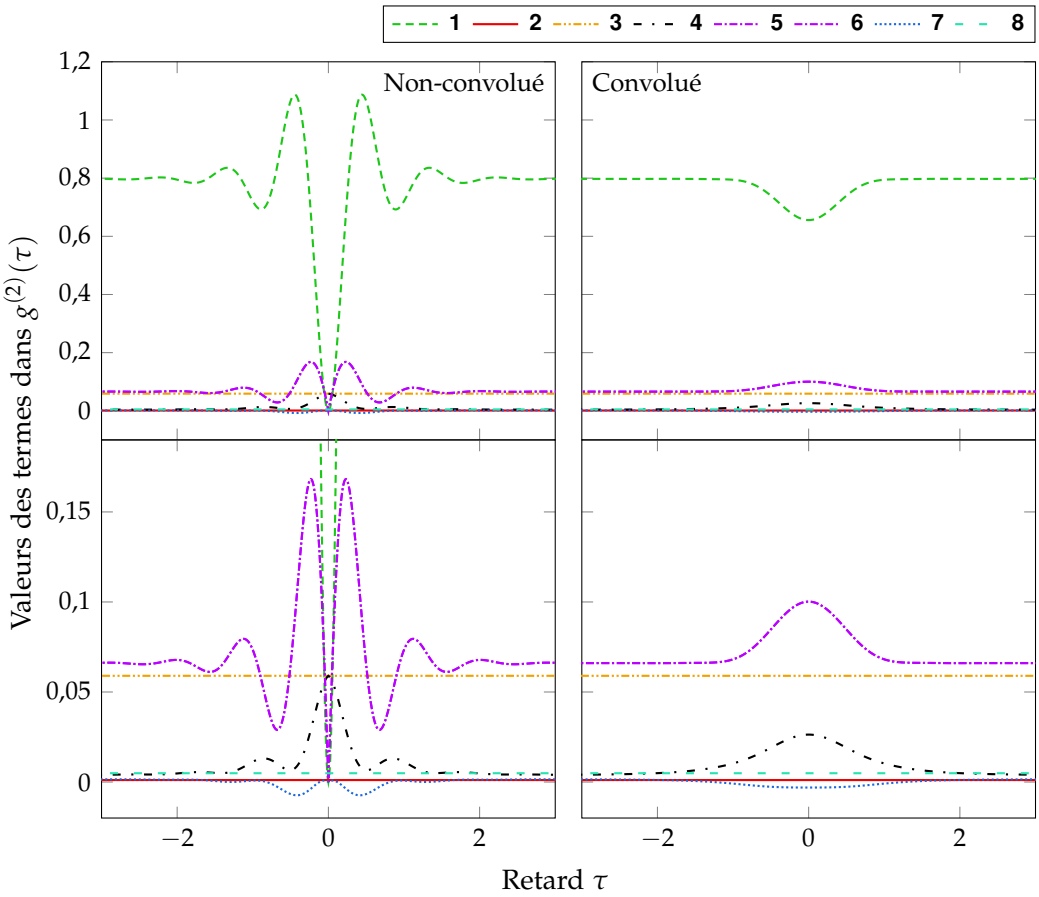


FIGURE 5.3 — Comportement des termes de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, pour une puissance d'excitation $s_0 = 10$. Les graphes de la ligne inférieure sont des agrandissements de ceux de la ligne supérieure.

convolution. De même pour les corrélateurs champ–intensité des termes **5** et **6** : s'ils présentaient un creux de dégroupement des photons autour de $\tau = 0$, celui-ci disparaît avec la convolution et le comportement résultant est inversé avec un pic décrivant un groupement des photons. Enfin, le terme **3** n'est pas affecté puisqu'il s'agit d'une constante correspondant au produit des intensités du laser parasite et de la boîte ; alors que le terme **4** qui correspond au produit des $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ est affaibli mais continue à décrire un phénomène de groupement.

Le bilan de l'ensemble de ces termes lorsque les courbes théoriques sont convoluées par la réponse instrumentale du système de détection est que, dans l'ensemble, les termes parasites décrivent soit une statistique poissonnienne (constante), soit un groupement des photons (pic à $\tau = 0$) que nous n'aurions pas pu décrire en ajoutant uniquement une constante à $G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)$. Ces termes prenant plus d'importance avec la puissance, cela explique pourquoi le groupement apparaît à haute puissance dans les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ de la figure 5.2.

Comportement en puissance des termes parasites

Sur la figure 5.4 sont représentées les dépendances en puissance d'excitation de chacun des termes de (5.2.6), pour deux valeurs du retard, $\tau = -7$ ns pour le graphe (a), et $\tau = 0$ ns pour (b) et (c). Les valeur à $\tau = -7$ ns représentent les valeurs aux temps longs ($|\tau| \gg T_1, T_2$). Elle ne sont pas influencées par une convolution par la réponse instrumentale, contrairement à celles obtenues à $\tau = 0$ qui sont fortement affectées, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent sur la figure 5.3. Ainsi, sur la figure 5.4 le graphe (b) correspond aux courbes non-convoluées, et (c) correspond aux courbes convoluées.

Analysons terme par terme les courbes de la figure 5.4, à l'exception des termes **7** et **8** qui ont des amplitudes très faibles devant les autres.

*Termes **2** et **3** indépendants de τ :* les termes **2** et **3** sont tous les deux constants en fonction de τ, et n'ont donc pas d'influence sur un comportement de groupement ou de dégroupement des photons. **2** est proportionnel à $|\tilde{\alpha}|^4$, c'est-à-dire au carré de l'intensité parasite, et **3** correspond au produit de l'intensité parasite avec l'intensité de photoluminescence résonnante. Pour $s_0 \gg 1$, lorsque le système à deux niveaux sature, l'intensité de photoluminescence est constante et ce dernier terme évolue donc en $|\tilde{\alpha}|^2$. Il croît donc plus vite lorsque s augmente que le terme **2** qui est lui en $|\tilde{\alpha}|^4$, mais ce dernier devient largement prédominant devant tous les autres pour $s_0 \gg 10^3$: la proportion d'intensité parasite devient alors la seule contribution significative.

*Terme **1**, dégroupement des photons de photoluminescence :* le terme **1** correspond à la fonction d'autocorrélation $G^{(2)}(\tau)$ de l'intensité de photoluminescence résonnante

$$G^{(2)}(\tau) \propto \underset{\mathbf{1}}{G^{(2)}_{\mathrm{QD}}(\tau)} + \underset{\mathbf{2}}{|\tilde{\alpha}|^4} + \underset{\mathbf{3}}{2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\mathrm{QD}}} + \Big[\underset{\mathbf{4}}{|\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau)} + \underset{\mathbf{5}}{\tilde{\alpha}\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle} + \underset{\mathbf{6}}{\tilde{\alpha}\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_-(t)\right\rangle} + \underset{\mathbf{7}}{\tilde{\alpha}^2\left\langle \tilde{S}_+(t+\tau)\,\tilde{S}_+(t)\right\rangle} + \underset{\mathbf{8}}{2\tilde{\alpha}|\tilde{\alpha}|^2\left\langle \tilde{S}_+(t)\right\rangle} + \text{c.c.}\Big]$$

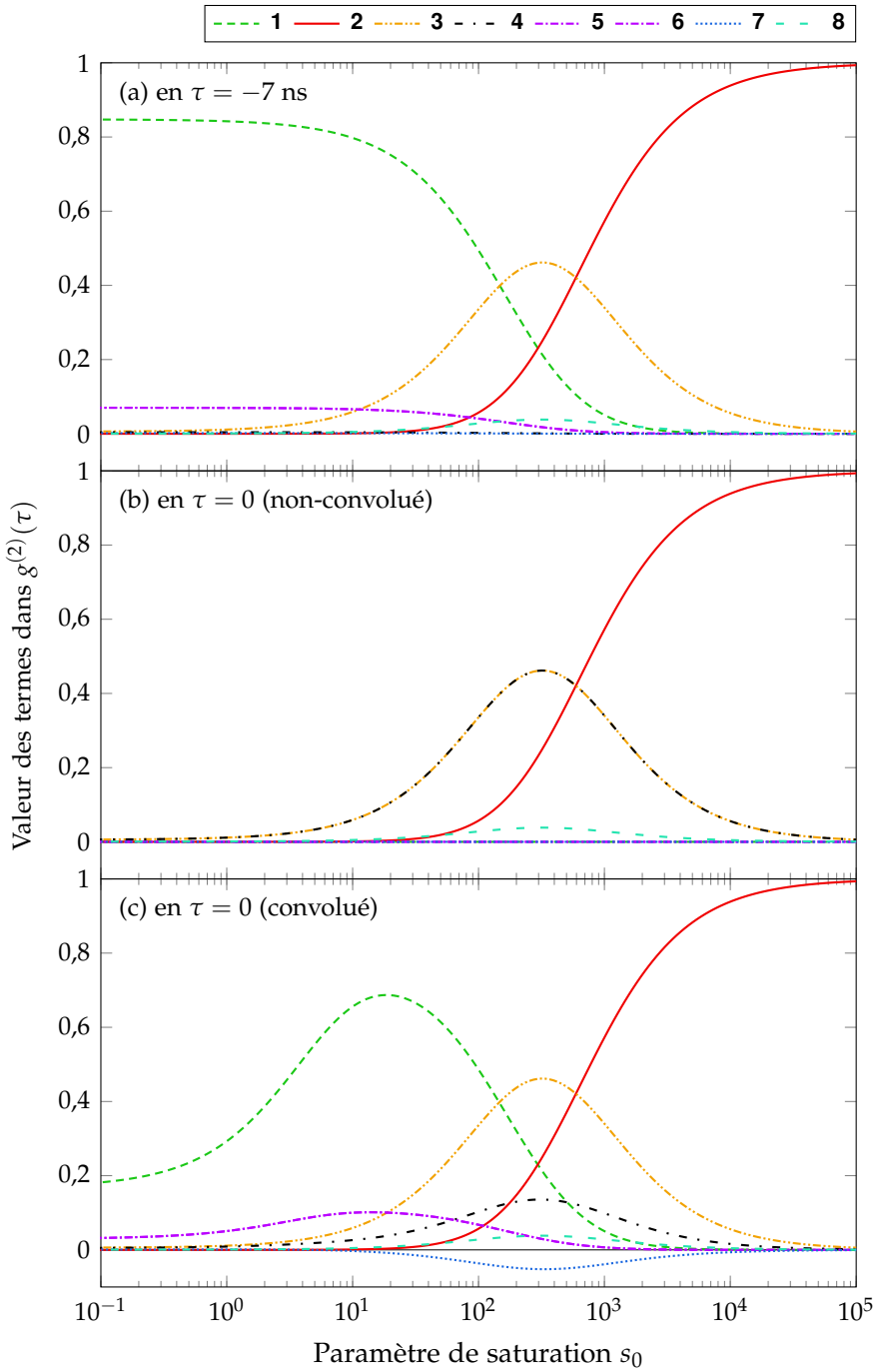


FIGURE 5.4 — Poids des différents termes dans $g^{(2)}(\tau \to \infty)$ et $g^{(2)}(\tau = 0)$, en convoluant ou non par la réponse instrumentale du système de détection.

seule, sans fond laser parasite ; il décrit donc le comportement d'une source de photons uniques. Aux temps longs (graphe (a)), ce terme est largement prédominant à basse puissance, pour $s_0 \ll 10^2$. Toutefois, à $\tau = 0$, la courbe **1** s'annule parfaitement à toutes les puissances dans le cas non-convolué par la réponse instrumentale (graphe (b)). Lorsque l'on prend en compte la résolution temporelle des détecteurs (graphe (c)), ce terme tend vers 0,17 à basse puissance. On retrouve donc le comportement décrivant le creux de dégroupement d'une source de photons uniques.

Lorsque la puissance augmente, la courbe de $G^{(2)}(\tau)$ oscille de plus en plus rapidement et la visibilité du creux de dégroupement se dégrade fortement : le terme **1** prend les mêmes valeurs à $\tau \to \infty$ (graphe (a)) et à $\tau = 0$ (graphe (c)) pour $s_0 \gg 10^1$. Le creux de dégroupement n'est alors plus résolu par le système de détection.

*Termes **4**, **5** et **6**, groupement des photons pour* $10^1 \ll s_0 \ll 10^3$ *:* nous parlerons plus spécifiquement dans ce paragraphe des termes à l'origine du phénomène de groupement des photons mesuré à haute puissance (cf. figure 5.2). Il y a tout d'abord le terme **4** qui correspond au produit des fonctions $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ pour le champ d'émission résonnante et pour le champ laser parasite. Comme attendu, ce terme prend une valeur maximale à $\tau = 0$ (graphe (b)) et s'annule aux temps longs (graphe (a)). L'effet est amoindri mais reste présent dans le graphe (c) lorsque la réponse instrumentale est prise en compte. Ce terme est responsable de l'essentiel du groupement observé entre $s_0 = 10^2$ et 10^3.

Les termes **5** et **6** sont des produits entre un champ parasite $\tilde{\alpha}$ et un corrélateur à trois champs d'émission résonnante — que l'on appelle corrélateur intensité–champ. En comparant les courbes correspondantes dans les graphes (a) et (c), on constate que lorsque l'on prend en compte la réponse instrumentale, ces termes prennent une valeur plus grande à $\tau = 0$ qu'aux temps longs, ce qui signifie qu'ils décrivent un comportement de groupement des photons.

Ces termes semblent également être les seuls termes parasites qui subsistent à basse puissance, ce qui est visible sur le graphe (a). Cependant, les courbes ont été tracées ici avec un champ parasite petit devant le champ de photoluminescence ; en réalité, la plupart des termes parasites ne disparaissent pas complètement. Il est logique qu'ils subsistent puisque même à basse puissance, un certain pourcentage des photons sera diffusé par le canal parasite. On retiendra toutefois que les corrélateurs intensité–champ sont très robustes et ne sont pas négligeables, même avec un champ parasite faible.

Ces corrélateurs intensité–champ sont parfois notés $g^{(1,5)}(\tau)$ ou $g^{(3/2)}(\tau)$. Ils permettent de mesurer directement le champ après avoir détecté un photon à $\tau = 0$, ce qui correspond à une préparation du système à deux niveaux dans l'état fondamental [Gerber, Rotter, Slodička *et al.* 2009]. Cela peut permettre notamment de mesurer la compression du champ électrique [Foster *et al.* 2002 ; Vogel 1991].

5.2.4 Amplitude du champ parasite, désaccord avec les mesures de PLE et limites du modèle

Au paragraphe 5.2.2, nous avons établi que $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ prenait une valeur de $0{,}058 \cdot \exp(\mathrm{i}\,0{,}99)$ (expression (5.2.5)) en ajustant nos mesures expérimentales de $g^{(2)}(\tau)$ avec ce paramètre, ce qui correspond en intensité à 0,34% de l'intensité de photoluminescence. En pratique, l'ensemble des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ effectuées sur QDIII-bis et sur B47-9 donnent une amplitude de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ entre 0,04 et 0,11 suivant les sessions de mesure (soit, en intensité, 0,2 à 1,2% de l'intensité de photoluminescence). Nous avons également utilisé le modèle du fond parasite avec les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ du chapitre 3. Pour ces mesures, les valeurs de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ utilisées sont plutôt de l'ordre de 0,15 à 0,2, c'est-à-dire une amplitude deux à cinq fois supérieures à celles déduites des mesures de $g^{(2)}(\tau)$, et une intensité entre 2 et 4% de l'intensité de photoluminescence. De plus, dans le cas des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ comme de $g^{(2)}(\tau)$, la valeur de la phase de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ varie fortement d'une session de mesure à l'autre, restant en général entre $-\pi/2$ et $\pi/2$, sans que nous puissions observer de tendance particulière.

Il semble donc qu'il y ait des incohérences entre les valeurs de l'amplitude du fond parasite établies à partir des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et de $g^{(2)}(\tau)$, mais aussi sur la phase d'un jour à l'autre.

Est-il alors possible de mesurer directement l'intensité de la diffusion parasite ? Une solution serait d'utiliser un spectre de PLE résonnante à très basse puissance, de manière à ne pas saturer le système à deux niveaux et ainsi estimer le rapport entre le fond et l'intensité du pic de photoluminescence résonnante correspondant à la transition excitonique.

Une mesure de spectre de PLE résonnante effectuée à une puissance correspondant à $s = 0{,}46$ est tracée sur le graphe supérieur de la figure 5.5. Cette mesure a été effectuée le même jour et dans les mêmes conditions que pour les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ présentées sur la figure 5.2.

Tout d'abord, on voit sur cette mesure les deux pics associés à la structure fine de l'exciton de la boîte QDIII-bis (pour plus de détails, cf. paragraphe 2.3.4, p. 66) desquels nous n'étudions que le pic à plus haute énergie. Ensuite, un fond très important est présent. Cette mesure est ajustée par la somme de deux profils de Voigt et un fond affecté d'une pente*. Cette pente permet d'extraire la valeur de l'intensité du fond au niveau du pic de résonance de l'exciton, et la valeur au sommet du pic permet de connaître l'intensité de photoluminescence et du fond que nous

* La présence d'une pente sur le fond de la mesure de PLE est due au fonctionnement de la diode laser. Pour changer l'énergie d'émission, la taille de la cavité est modifiée. Afin d'éviter les sauts d'un mode longitudinal à un autre, le courant d'alimentation de la diode laser est modifié pour décaler la courbe de gain (fonction appelée *feed-forward*) et le maintenir centré sur le même mode longitudinal malgré le changement de longueur de cavité.

appellerons intensité totale, sachant qu'il peut y avoir des interférences entre les deux composantes. On mesure ainsi au sommet du pic une intensité de $38{,}9 \cdot 10^3$ photons/s, tandis que le fond vaut $8{,}45 \cdot 10^3$ photons/s, ce qui permet d'estimer un rapport de l'intensité du fond sur l'intensité totale de 22%.

Étudions à présent le spectre de PLE résonnante prévu par le modèle, qui est tracé sur le graphe inférieur de la figure 5.5. Il suffit pour ce faire d'utiliser la valeur de $G^{(1)}(0)$, qui est égale à l'intensité totale émise, et de modifier le désaccord Δ dans l'expression (5.1.4) du liouvillien. Comme le modèle ne prend pas en compte la structure fine de l'exciton, seule la raie à plus haute énergie est tracée. Afin d'évaluer l'effet du fond parasite, le spectre de PLE résonnante a été tracé avec et sans ce fond. Si l'on tente d'estimer le rapport entre l'intensité du fond et l'intensité totale, comme précédemment avec la mesure, on obtient une valeur inférieure à 0,5%, compatible avec la valeur de 0,34% estimée avec $\tilde{\alpha}$.

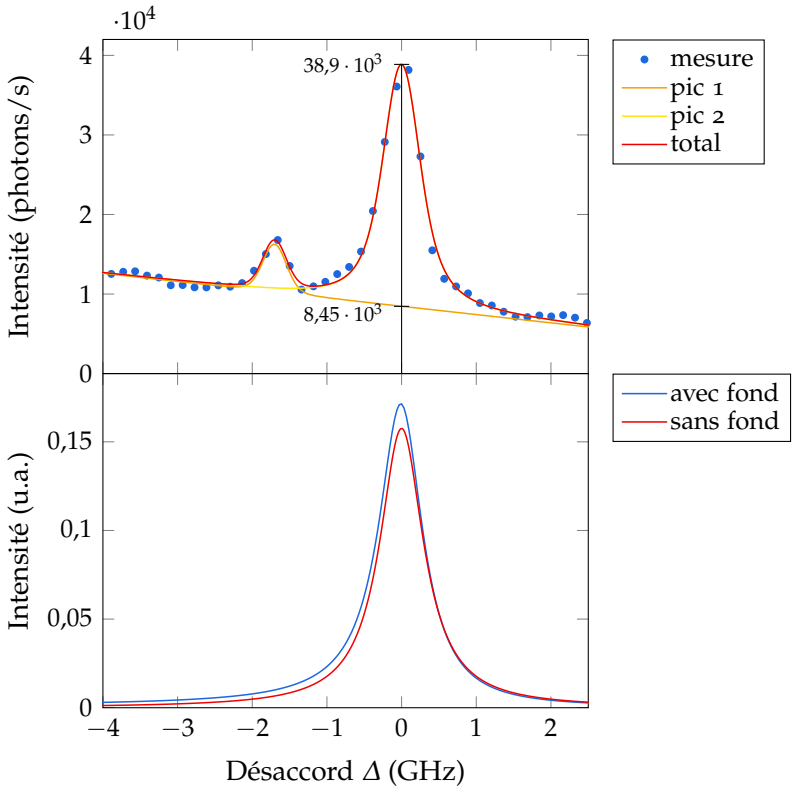


FIGURE 5.5 — Spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante de l'exciton neutre de la boîte QDIII-bis. La puissance d'excitation correspond à $s_0 = 0{,}46$.

Le modèle prévoit donc une altération minime du spectre de PLE, sans commune mesure avec les 22% de fond mesurés. Or ce modèle semble prévoir correctement le comportement de l'ensemble des mesures de corrélation de $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ — et, comme nous allons le voir à la section suivante, également les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$. Le seul problème dans ce cas vient des incohérences que nous avons citées sur les

valeurs du paramètre $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$.

Nous touchons ici aux limites du modèle qui suppose la présence d'un diffuseur unique dans le volume observé par le système de détection. Cette hypothèse est d'autant plus simpliste étant donné que le champ du laser d'excitation n'est pas focalisé dans l'échantillon et illumine tous les diffuseurs présents dans le volume confocal. Cela peut expliquer les variations de la phase de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ d'une session de mesure à l'autre, où l'on peut à chaque fois privilégier certains diffuseurs par rapport à d'autres, selon les positions relatives d'un diffuseur, de la boîte quantique, de l'optique de collection.

De plus, ces diffuseurs peuvent avoir une réponse inélastique : le fond parasite ne sera donc plus parfaitement cohérent avec le laser et cela brouillera les franges d'interférences entre le signal de photoluminescence et le fond parasite. Cela expliquerait pourquoi le spectre de PLE résonnante présente un fond si important alors que le modèle qui fait l'hypothèse d'interférences avec 100% de visibilité prévoit des valeurs du fond bien plus faibles.

Ainsi, bien que ce modèle explique correctement certains comportements comme le groupement des photons qui apparaît à haute puissance sur les mesures de $g^{(2)}(\tau)$, il pourrait être amélioré en utilisant de multiples diffuseurs et de la relaxation dans le processus de diffusion parasite. Une solution pour le réaliser pourrait être, par exemple, de séparer la diffusion parasite en une partie cohérente et une partie incohérente, dont la somme serait reliée au fond parasite mesuré sur les spectres de PLE résonnante..

5.3 Mesures d'indiscernabilité en présence d'un fond laser parasite

Jusqu'à présent, nous avons utilisé le modèle avec le fond laser pour reproduire les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et de $g^{(2)}(\tau)$, qui ne pouvaient pas toujours être expliquées sans ce fond parasite. Bien que nous ayons ajusté les mesures d'indiscernabilité du chapitre 4 de manière satisfaisante, nous avons dû pour cela utiliser des temps T_1 et T_2 de 0,3 et 0,52 ns, légèrement inférieurs à ceux estimés au chapitre 3, respectivement de 0,37 et 0,54 ns (cf. paragraphe 3.3.7, p. 101).

Le développement de l'expression de $g^{(2X)}(\tau)$ en présence d'un fond laser donne l'expression (4.2.16), que l'on rappelle ici :

$$g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{D}\Big[TR(T^2+R^2)\,g^{(2)}(\tau) + RT^3\,g^{(2)}(\tau-\Delta t) + T_{\mathrm{A}}R_{\mathrm{A}}R_{\mathrm{B}}^2\,g^{(2)}(\tau+\Delta t) - 2R^2T^2\,V_0\left|g^{(1)}(\tau)\right|^2\Big] \quad (5.3.1)$$

où $D = 2\,RT(R^2+T^2)$, T et R étant les coefficients de transmission et de réflexion

des séparatrices de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel*, et V_0 le coefficient de visibilité des interférences à deux photons, prenant en compte les imperfections du montage, et éventuellement la configuration parallèle ou croisée de la polarisation entre les deux bras de l'interféromètre.

Dans cette section, $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ sont donnés par leurs expressions (3.2.12) et (3.3.17), qui prennent en compte le fond laser parasite. Nous chercherons donc à confronter ce modèle aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, et verrons que nous pouvons cette fois-ci obtenir des courbes théoriques reproduisant fidèlement les mesures, en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés indépendamment dans le chapitre 3. Nous allons donc reprendre les deux études menées dans le chapitre 4, où nous avons mesuré $g^{(2X)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation et en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation.

5.3.1 Étude en fonction de la puissance d'excitation

Nous répétons ici la même étude qu'au paragraphe 4.3.2 (p. 137). Les ajustements présentés sur la figure 5.6 utilisent le modèle développé dans ce chapitre, prenant en compte le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation. De manière similaire à ce qui était présenté sur la figure 4.16, chaque colonne correspond à un point de mesure, c'est-à-dire à une puissance d'excitation correspondant ici au paramètre de saturation s_0. Pour chaque puissance d'excitation, on mesure $g^{(2X)}(\tau)$ en configuration de polarisation parallèle et croisée, et on trace la courbe de visibilité des interférences à deux photons.

Pour cette session de mesure, nous présentons ici les mesures de la plus haute puissance d'excitation ($s_0 = 4{,}4$, colonne de gauche) à la plus basse ($s_0 = 0{,}12$, colonne de droite). La première ligne correspond aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ avec la polarisation parallèle entre les deux bras de l'interféromètre — l'ajustement donne $V_0 = 97\%$. La deuxième ligne correspond au cas où les polarisations sont croisées ($V_0 = 20\%$). La troisième ligne donne les courbes de visibilité $V(\tau) = 1 - g^{(2X)}_{/\!/}(\tau)/g^{(2X)}_{\perp}(\tau)$.

Les comportements observés en fonction de la puissance sont donc de même nature que ceux observés sur la figure 4.16 : à haute puissance, les oscillations très rapides de $g^{(2)}(\tau)$ rendent le creux de dégroupement très étroit et mal résolu par le système de détection, tandis qu'il est plus large et très bien résolu à basse puissance. Lorsque la puissance diminue, on observe de plus l'augmentation de la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux, du fait de la présence de plus en plus prononcée de la composante longue dont le temps caractéristique est le temps de cohérence du laser d'excitation.

---

* Pour simplifier, nous considérons que les coefficients de transmission et de réflexion sont les mêmes pour les deux séparatrices de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel, ce qui est le cas en réalité.

Les courbes théoriques en rouge continu sur la figure 5.6 utilisent le modèle de ce chapitre et prennent en compte le fond parasite. Elles ajustent de manière très satisfaisante les mesures, et on pourra noter qu'elles ont été tracées en utilisant les temps T_1 et T_2 déterminés de manière rigoureuse au chapitre 3.

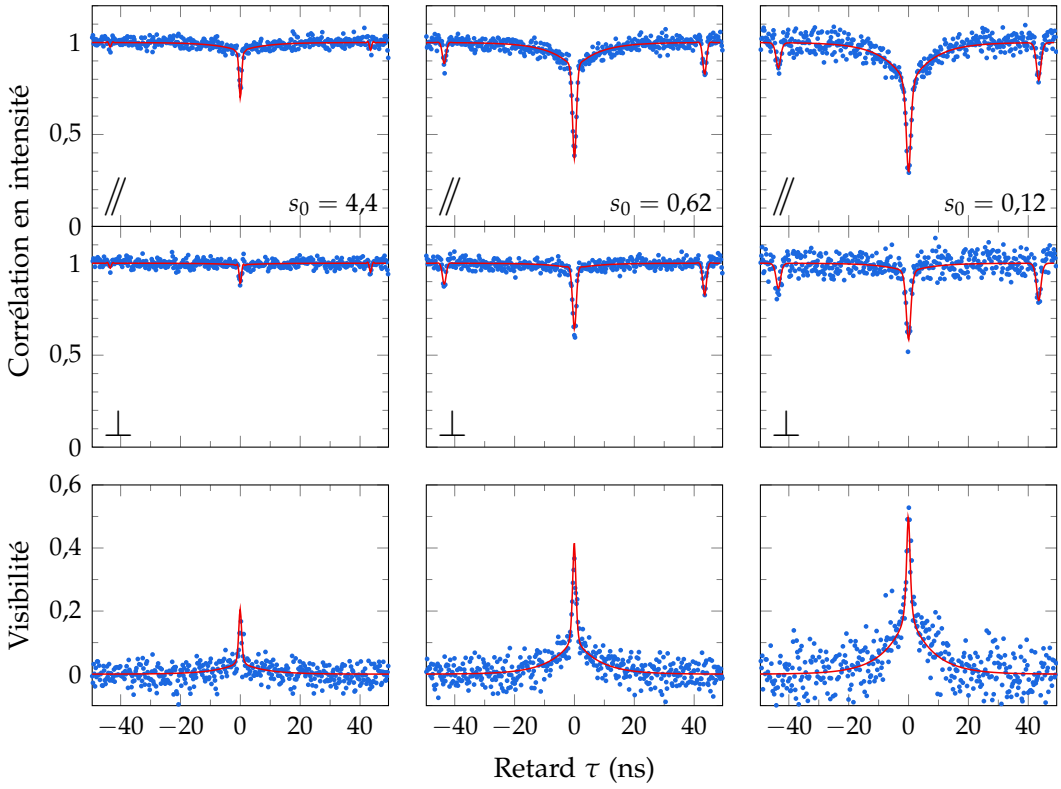


FIGURE 5.6 — Mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis en fonction de la puissance d'excitation, en prenant en compte le fond laser parasite. Il s'agit des mêmes mesures que celles présentées au chapitre 4.

Fenêtre temporelle de coalescence – confrontation à l'expérience

Observons maintenant l'effet de la prise en compte du fond parasite sur l'estimation de la fenêtre temporelle de coalescence. La figure 5.7 trace la FTC en fonction de la puissance d'excitation. Les points expérimentaux sont tirés des mesures de la figure 5.6 et la courbe verte pointillée est issue du meilleur ajustement sur les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ en l'absence de fond parasite, en utilisant $T_1 = 0{,}37$ ns et $T_2 = 0{,}54$ ns (valeurs établies au chapitre 3). La courbe rouge est le meilleur ajustement des mesures en ajoutant le fond parasite au modèle*.

* Sans fond parasite, la puissance de saturation obtenue par l'ajustement est 7% plus grande qu'avec le fond parasite et les paramètres de visibilité V_0 changent légèrement. Tous les autres paramètres sont rigoureusement identiques.

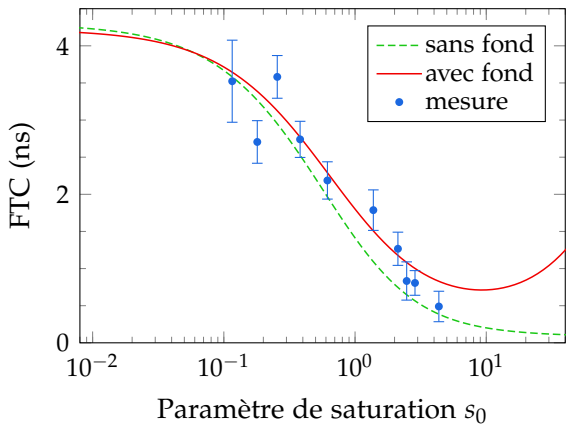


FIGURE 5.7 — Fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation avec et sans fond parasite.

Les deux courbes théoriques sont compatibles avec les points expérimentaux. En réalité, pour la plupart, leur bon accord avec la courbe théorique sans fond parasite est légèrement abusif et il convient de faire une comparaison plus détaillée, ce que nous allons faire au paragraphe suivant.

Comparaison détaillée des ajustements théoriques de $g^{(2X)}(\tau)$ avec et sans fond laser parasite

La figure 5.8 compare les ajustements de $g^{(2X)}(\tau)$ et des courbes de visibilité avec et sans le fond parasite, en se focalisant sur les retards τ faibles. Il faut prendre garde aux échelles qui sont ajustées pour chaque courbe de manière à mieux en distinguer les détails. Les courbes rouges continues correspondent à l'ajustement prenant en compte le fond parasite, tandis que les courbes vertes pointillées proviennent de l'ajustement sans fond parasite. Comme précédemment, chaque colonne correspond à une puissance d'excitation et chaque ligne à une grandeur différente, les deux premières étant les mesures de $g^{(2X)}_{/\!/}(\tau)$ et de $g^{(2X)}_{\perp}(\tau)$, la troisième étant la visibilité des interférences. La quatrième ligne donne l'écart entre la courbe de visibilité théorique et à la courbe expérimentale*.

Nous nous intéresserons à quelques cas particuliers de la figure 5.8, représentatifs d'un problème plus général. Tout d'abord, la mesure de $g^{(2X)}(\tau)$ pour $s_0 = 4{,}4$, en polarisation parallèle, pour laquelle l'ajustement sans fond est bien plus éloigné de la mesure que l'ajustement avec fond. En effet, le modèle sans fond prévoit une disparition complète de la composante longue due à la diffusion élastique par le système à deux niveaux. Or la mesure montre une composante longue résiduelle,

* Concrètement il s'agit de la différence des deux, lissée afin de mieux en distinguer les comportements d'ensemble.

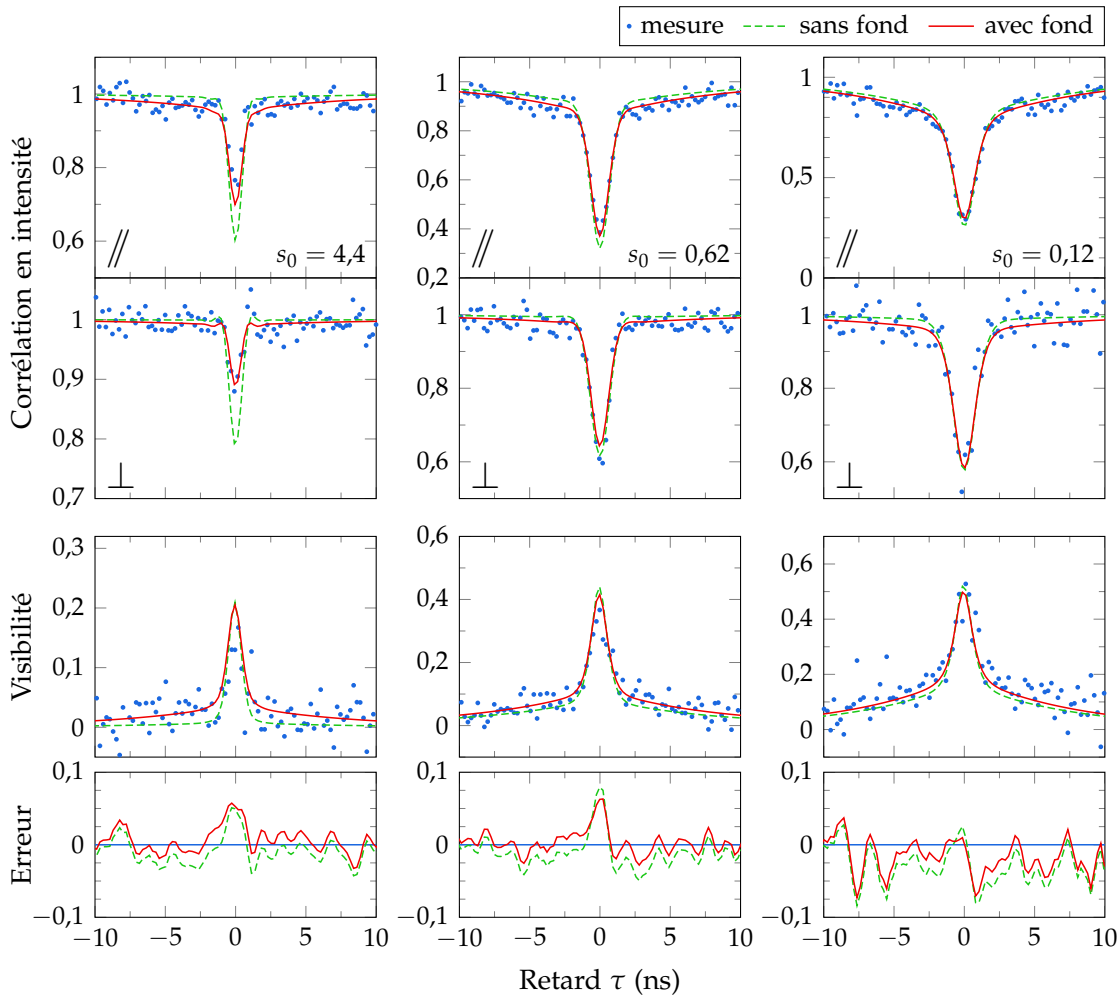


FIGURE 5.8 — Comparaison des ajustements avec et sans fond laser, en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés au chapitre 3. Les courbes d'erreur de la dernière ligne ont été lissées pour s'abstraire au mieux du bruit. Il faudra prendre garde aux échelles en ordonnée adaptées au cas par cas pour mieux distinguer les différences entre les courbes.

qui est expliquée ici par la présence d'un fond parasite. Cela est corroboré par l'ajustement avec le modèle prenant en compte le fond, qui concorde beaucoup mieux avec la mesure.

Ce défaut se retrouve sur la courbe de visibilité correspondante, où la courbe verte décroît beaucoup plus vite vers 0 lorsque τ augmente, et on le retrouve enfin dans la courbe d'erreur de la dernière ligne, où pour $|\tau| > 1$ ns, la courbe verte souffre d'un décalage constant, négatif, qui montre qu'elle sous-estime la visibilité sur cette gamme de τ, ce qui n'est pas le cas de la courbe rouge qui prend en compte le fond parasite et qui est mieux centrée sur 0. Pour $|\tau| < 1$ ns, en revanche, l'erreur est positive pour les deux courbes, ce qui signifie que les ajustements surestiment la

valeur de la visibilité.

Lorsque l'on calcule finalement la FTC, qui est l'aire de la courbe de visibilité, on obtient donc un résultat plus proche de la mesure pour l'ajustement sans fond (courbe verte pointillée), car les deux erreurs se compensent. Cela explique pourquoi le point correspondant sur la figure 5.7 (point à plus haute puissance) est plus proche de la courbe calculée avec le modèle sans fond qu'avec celle du modèle prenant le fond en compte.

Si l'on observe attentivement les ajustements aux autres puissances, ce comportement peut être retrouvé et montre que le modèle prenant en compte le fond réussit mieux à décrire le comportement de $g^{(2X)}(\tau)$. Toutefois, du fait des compensations d'erreur entre $|\tau| < 1$ ns et $|\tau| > 1$ ns, les deux modèles donnent des courbes théoriques de FTC satisfaisantes.

Fenêtre temporelle de coalescence – comportement théorique avec ou sans fond parasite

Si la figure 5.7 se limite à la zone explorée par les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, la figure 5.9 montre ce que prévoit le modèle à toutes les puissances lorsque l'on prend en compte le fond laser (courbe rouge continue) ou pas (courbe verte pointillée). Ces courbes ont été tracées dans les mêmes conditions que précédemment, et l'on peut décrire leur comportement en distinguant trois zones notées A, B et C. Les encarts montrent l'allure de la visibilité des interférences à deux photons à une puissance située dans chacune de ces zones, prenant en compte le fond laser.

A : à basse puissance, c'est-à-dire pour $s_0 \ll 1$, les deux courbes ont essentiellement le même comportement, ce qui montre que le fond laser est négligeable devant l'émission du système à deux niveaux. À très basse puissance, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.4.6 (p. 38), cette émission est essentiellement due à la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux, dans la limite du rapport $\frac{T_2}{2T_1}$, ce qui explique l'allure de la courbe de visibilité où la composante large correspondant à la diffusion élastique du laser est forte et la composante étroite est due à la statistique de photons uniques de la source. Cette courbe ne dépendant plus de la puissance si celle-ci est suffisamment basse, cela donne un palier à 4,3 ns pour $s_0 \ll 1$.

C : à très haute puissance, c'est-à-dire pour $s_0 \gg 100$, les deux courbes tendent vers des valeurs radicalement différentes. Sans le fond laser, la FTC se stabilise à une valeur proche de 0 (en fait 80 ps)*, alors qu'elle tend vers 6,4 ns si l'on prend en compte le fond laser. On comprend que la FTC sans fond laser diminue,

* Il est difficile de vérifier cette valeur, qu'il n'est pas évident de mesurer expérimentalement. Le fait que la FTC ne tende pas rigoureusement vers 0 peut être dû à un biais numérique lié à la convolution par le système de détection.

l'émission résonnante n'étant plus due qu'à de la diffusion inélastique par le système à deux niveaux et les fonctions de corrélation $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ oscillant de plus en plus rapidement, et étant donc de moins en moins résolues par le système de détection. Lorsque l'on prend en compte le fond laser, celui-ci est dû à une diffusion élastique du laser d'excitation par un diffuseur linéaire idéal qui ne sature donc pas comme le système à deux niveaux. Comme nous l'avions vu au paragraphe 5.2.3, pour une puissance d'excitation suffisamment élevée ($s_0 \gg 1000$), le fond parasite devient donc complètement prépondérant sur l'émission du système à deux niveaux. Les photons détectés se comportent alors comme s'ils provenaient directement du laser d'excitation seul : comme on peut le voir sur la courbe de visibilité, le pic étroit dû à la statistique de photons uniques a disparu et le comportement est similaire à ce qui est décrit dans le paragraphe 4.2.6 (p. 132).

B : entre les régimes A et C, pour des puissances $1 < s_0 < 100$, le régime B correspond à la transition où la diffusion parasite du laser d'excitation prend peu à peu le pas sur l'émission du système à deux niveaux qui sature, avec un minimum correspondant au moment où l'influence de la diffusion parasite sur la FTC vainc celle du système à deux niveaux.

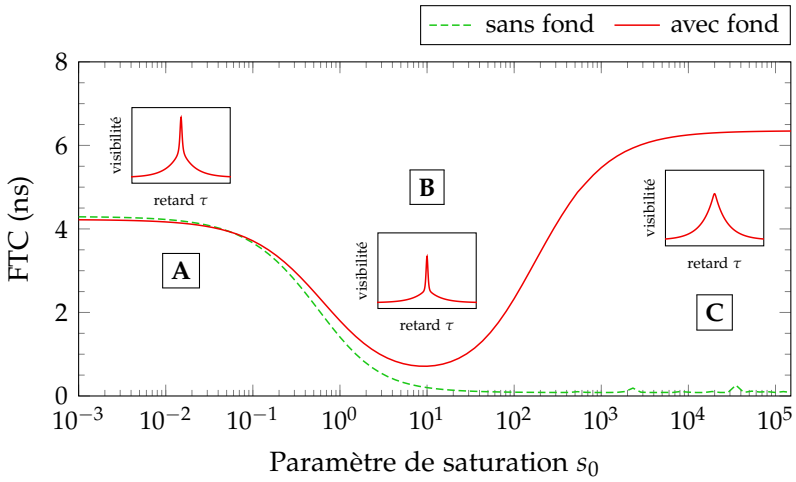


FIGURE 5.9 — Comportement théorique de la fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation, avec la prise en compte ou pas du fond parasite.

Il serait donc intéressant d'explorer les très hautes puissances pour confirmer le comportement prévu par le modèle. Cela pourrait aussi fournir de solides preuves de la présence du fond laser parasite et permettre de l'évaluer précisément. Les niveaux de puissance impliqués sont toutefois susceptibles d'activer des comportements fortement non-linéaires et des processus multiples difficiles à identifier ; cela est d'autant plus vrai dans le cas où l'on excite le système en injectant le laser d'excitation par la tranche (ce qui est notre cas) et que tout l'échantillon est illuminé.

5.3.2 Étude en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation

De la même manière qu'au chapitre 4, intéressons-nous maintenant au comportement des mesures d'indiscernabilité en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation, avec une puissance d'excitation basse devant le niveau de saturation. Il s'agit de vérifier que le modèle prenant en compte le fond laser parasite permet d'ajuster les mesures tout en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés rigoureusement au chapitre 3.

Sur la figure 5.10, on retrouve les mesures exposées au chapitre 4, ajustées en utilisant le nouveau modèle qui prend en compte le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

On notera que, du fait que les courbes en configuration de polarisation croisée sont toutes identiques, elles ont été ajustées avec un fond laser nul et une visibilité des interférences $V_0 = 0$, ce qui retire toute dépendance de la fonction d'ajustement vis-à-vis de la cohérence du laser d'excitation*.

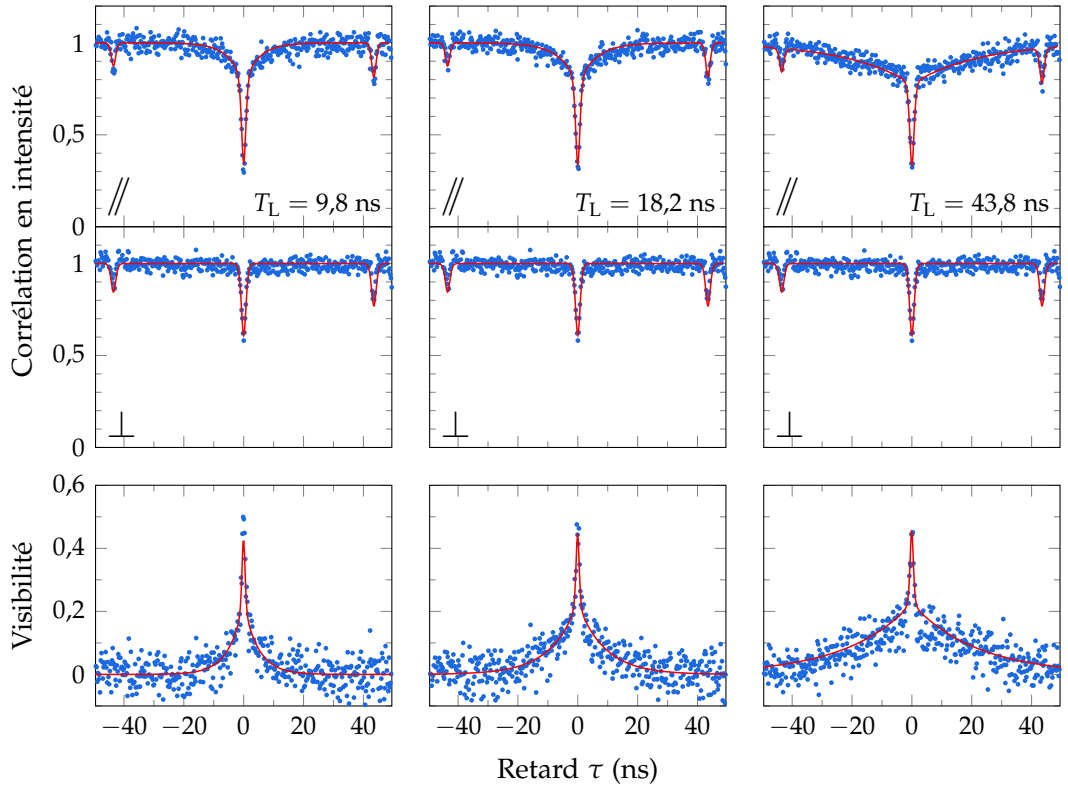


FIGURE 5.10 — Mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation, en prenant en compte le fond laser parasite.

La figure 5.11 montre l'évolution du la FTC en fonction du temps de cohérence du

* Avec ces paramètres, la fonction $g^{(2X)}(\tau)$ ne dépend que de $g^{(2)}(\tau)$, sans fond parasite, qui ne dépend pas lui-même du laser d'excitation.

laser, dans les conditions de la figure 5.10. Comme précédemment, la courbe rouge continue représente le modèle qui prend en compte le fond laser parasite alors que la courbe verte pointillée ne le prend pas en compte. On constate un bon accord entre les courbes théoriques et les points expérimentaux, à l'exception du point à $T_L = 43$ ns. Ce temps de cohérence ne vérifie pas la condition $\Delta t \gg T_C$ (où Δt est le retard introduit par l'interféromètre) requise par le modèle. Il est donc logique que ce point s'éloigne de la courbe théorique. De plus, comme l'intégration des mesures expérimentales se fait dans la limite de ~ 45 ns, une partie de la courbe de visibilité se trouve en dehors de cet intervalle. La valeur calculée de la FTC aura donc tendance à sous-estimer la valeur réelle si la mesure était effectuée dans de bonnes conditions.

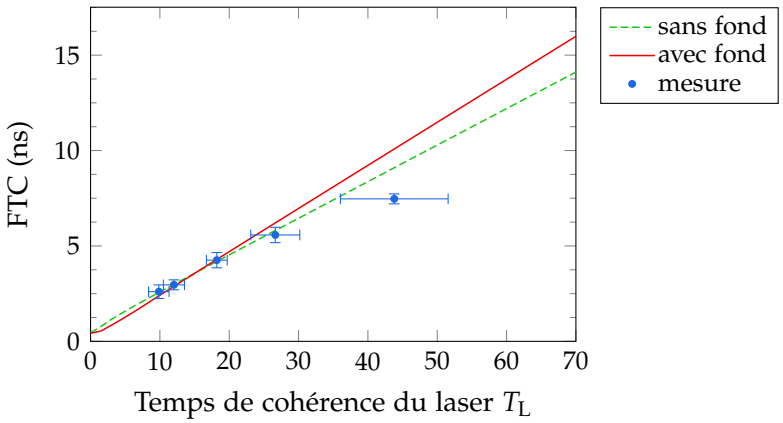


FIGURE 5.11 — Fenêtre temporelle de coalescence en fonction du temps de cohérence du laser T_L, à basse puissance d'excitation ($s_0 = 0{,}17$).

Conclusion du chapitre

Nous avons donc montré que l'ajout d'un fond parasite permet de reproduire avec justesse le comportement de $g^{(2)}(\tau)$ et de $g^{(2X)}(\tau)$. Nous retrouvons en particulier le groupement des photons perçus par le système de détection lors de la mesure de $g^{(2)}(\tau)$ à des puissances d'excitation de l'ordre de $s_0 = 100$. Ce phénomène est inexplicable à partir du seul modèle du système à deux niveaux, il s'agit d'interférences entre le champ de photoluminescence et le champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

Si l'amélioration peut sembler minime pour les mesures d'indiscernabilité ($g^{(2X)}(\tau)$) et surtout sur la fenêtre temporelle de coalescence, nous avons utilisé des temps caractéristiques identiques à ceux établis indépendamment au chapitre 3, et la FTC n'est pas le meilleur estimateur de la qualité des ajustements sur les courbes de corrélation. Rappelons que le modèle précédent nécessitait d'utiliser des temps légèrement modifiés, à l'extrémité des intervalles d'incertitude, pour permettre de reproduire les mesures.

Un régime à très haute puissance, pour lequel le fond parasite devient grand devant l'émission de photoluminescence, a également été décrit qualitativement. Son exploration pourrait établir précisément la part de laser parasite, mais reste difficile à atteindre expérimentalement car l'hypothèse de diffusion linéaire et élastique est assez contraignante.

En effet, ce modèle peut montrer ses limites. Du fait de la simplicité de l'hypothèse d'un diffuseur unique, des incohérences apparaissent entre les valeurs de fond laser estimées suivant la mesure effectuée, parfois même entre différentes sessions de la même mesure ; la différence peut être de plusieurs ordres de grandeur. Les hypothèses pourraient être plus réalistes en considérant de multiples diffuseurs. De plus, il serait intéressant d'étudier les mécanismes de diffusion : les autres niveaux de la boîte quantique et même le cristal du substrat sont autant de sources possibles de diffusion, qui peut être élastique, linéaire ou pas, en fonction de l'intensité lumineuse.

Conclusion

Nous avons donc étudié l'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation continue et résonnante, qui peut être décrite efficacement par le modèle du système à deux niveaux. L'émission des photons par une boîte quantique peut se séparer en deux contributions suivant le régime de puissance d'excitation. À haute puissance par rapport à la puissance de saturation, on observe des oscillations de Rabi, visibles spectralement sous la forme du triplet de Mollow. À basse puissance, la réponse en intensité du système est linéaire et l'essentiel de l'émission se fait par diffusion élastique ; le spectre d'émission se rapproche alors de celui du laser d'excitation et peut donc comporter une raie très fine. Cela signifie que les photons émis ont alors la cohérence du laser d'excitation, qui peut être beaucoup plus longue que celle de la boîte quantique. Ce régime dit de diffusion Rayleigh n'est significatif que si la boîte est correctement isolée de son environnement, ce qui signifie que son taux de déphasage pur n'est pas trop grand.

Ce comportement se retrouve sur les mesures d'indiscernabilité. À basse puissance d'excitation, deux composantes peuvent être observées sur l'évolution temporelle de la fonction de corrélation : une composante longue (quelques dizaines de nanosecondes dans notre cas) qui est associée à la diffusion élastique du laser ; une composante courte (de l'ordre de la nanoseconde et mal résolue dans notre cas) caractéristique des processus de déphasage intrinsèques à la boîte quantique. En variant la puissance d'excitation, le poids de ces deux composantes est modifié en accord avec les prédictions du modèle du système à deux niveaux. Ces mesures sont inédites et donnent une idée concrète du rôle essentiel de la diffusion élastique dans le régime dit de diffusion Rayleigh, pour une puissance d'excitation faible par rapport à la puissance de saturation.

L'étude que nous avons menée a surtout permis de mieux comprendre comment la notion d'indiscernabilité devait être approchée dans le cas d'une source continue. D'une part, d'un point de vue expérimental, nous avons vu qu'il était absolument indispensable que le retard introduit par l'interféromètre soit très grand devant le temps de cohérence des photons, afin d'éliminer les interférences à un photon. D'autre part, du point de vue de l'analyse des données expérimentales, nous avons vu que suivre la valeur de $g^{(2X)}(0)$ n'est pas forcément pertinent étant donné qu'elle vaut en théorie toujours 0, et qu'en pratique elle est fortement affectée par la résolution temporelle du système de détection. Il est plus approprié d'étudier les dynamiques du creux de coalescence, ce que nous faisons en utilisant la fenêtre temporelle

de coalescence. Sous ce nouveau regard, les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ montrent que, dans le régime de diffusion Rayleigh, l'indiscernabilité et la cohérence des photons émis peuvent être maintenues sur des temps très longs, déterminés par le temps de cohérence du laser d'excitation. Avec notre diode laser, nous pouvons ainsi, en théorie, atteindre des fenêtres temporelles de coalescence de l'ordre de la microseconde, ce qui correspond à plusieurs kilomètres.

De plus, nous avons montré que la prise en compte du fond parasite diffusé, inhérent à l'excitation résonnante, est parfois indispensable pour comprendre des comportements inattendus et non triviaux dans les mesures de corrélation, comme une inversion du comportement de dégroupement des photons dû à l'émission de photons uniques, qui peut devenir un groupement du fait des termes d'interférences avec le fond parasite. L'ensemble de ces comportements sont bien décrits par le modèle théorique du dernier chapitre, qui permet de plus de raffiner l'analyse des mesures d'indiscernabilité.

Si l'essentiel de ce travail est voué à comprendre la physique associée aux notions d'indiscernabilité et de cohérence appliquées aux boîtes quantique, il ouvre des perspectives concernant l'utilisation d'une telle source en cryptographie quantique et en information quantique en général. Des sources continues possèdent l'avantage de ne pas nécessiter de synchronisation, à condition de disposer de détecteurs suffisamment rapides par rapport au temps de cohérence [Halder *et al.* 2007 ; Żukowski *et al.* 1993]. La souplesse offerte par le régime de diffusion Rayleigh permet de contrôler l'indiscernabilité des photons uniques en contrôlant la cohérence du laser d'excitation. Les expériences d'intrication de *time-bin* [Brendel *et al.* 1999] sont donc le prolongement logique de ces travaux.

A À propos du contrôle de la cohérence du laser d'excitation

Afin de mesurer les interférences à deux photons en excitation continue, nous avons vu au paragraphe 4.2.1 qu'il était indispensable de détruire les interférences à deux photons en vérifiant $\Delta t \gg T_C$ où Δt est le retard introduit par l'interféromètre et T_C est le temps de cohérence de la source. Pour cela, commençons par noter que le temps de cohérence d'une diode laser est typiquement de l'ordre de la microseconde. Pour détruire les interférences à un photon, deux possibilités s'offrent alors à nous : tout d'abord avoir un interféromètre dont l'un des bras est très long, soit vraisemblablement plusieurs centaines de mètres de fibre. Sans parler des atténuations impliquées sur des signaux déjà faibles, nous verrons que les mesures seraient difficiles à réaliser étant donné la différence d'échelle entre les temps impliqués — temps de vie et temps de décohérence intrinsèques de la boîte, temps de cohérence du laser, avec trois à quatre ordres de grandeur de différence. La deuxième possibilité est de jouer sur la cohérence du laser. Plutôt que d'utiliser un mauvais laser, nous avons choisi d'utiliser un dispositif permettant de dégrader la cohérence de notre diode laser.

De manière générale, le contrôle de la cohérence du laser d'excitation se fait en utilisant une source puissante de bruit blanc très large bande, injectée sur l'entrée de modulation de la diode laser. Le courant d'alimentation de la diode est donc modulé avec un bruit blanc, ce qui a l'effet moyen d'élargir la raie de manière artificielle. La modulation du courant d'alimentation a deux effets : d'une part elle change bien sûr l'amplitude du champ émis par le laser, d'autre part elle change son énergie, étant donné que la longueur d'onde émise par une diode laser dépend du courant d'alimentation qui modifie considérablement l'indice et donc la longueur de la cavité.

A.1 Cohérence d'un laser modulé avec un bruit blanc limité en bande passante

Le générateur de bruit blanc utilisé est un appareil Toptica LCC *(Laser Coherence Controller)*, spécialement conçu pour fonctionner avec les diodes laser du constructeur. Le contrôle de la puissance de modulation se fait en atténuant la source. La puissance de modulation sera donc précisée en atténuation, en dB, plutôt qu'en unité de

puissance.

Le courant d'alimentation i_d de la diode laser est modulé en amplitude par la source de bruit :

$$i_\mathrm{d}(t) = i_0 + i_\mathrm{bruit}(t) \tag{A.1.1}$$

où i_0 correspond au courant moyen donné par l'alimentation dans le contrôleur de la diode laser et $i_\mathrm{bruit}(t)$ correspond au bruit ajouté avec le module LCC.

Les limites de l'amplitude de modulation sont données par le seuil du laser d'une part et le courant d'alimentation maximal d'autre part. Pour atteindre l'amplitude maximale de modulation, on règle donc le courant d'alimentation i_0 de manière à être à mi-chemin entre ces limites, puis on augmente progressivement la puissance de modulation.

La modulation d'amplitude aura bien sûr un effet spectral, mais surtout un effet sur la fonction d'autocorrélation en intensité $g^{(2)}$ du laser [Svelto & Hanna 1998, cf. § 7.11, p. 297–300]. Pour comprendre cela, on pose P l'intensité du laser. On peut alors écrire :

$$P(t) = \langle P \rangle + \delta P(t) \tag{A.1.2}$$

où $\langle P \rangle$ est la moyenne d'ensemble de P, égale à la moyenne temporelle pour un processus ergodique, et δP l'écart instantané à cette valeur moyenne.

On peut maintenant définir la fonction d'autocorrélation sur le bruit d'intensité :

$$C_{pp}(\tau) = \frac{\langle \delta P(t) \delta P(t+\tau) \rangle}{\langle P \rangle^2} \tag{A.1.3}$$

La transformée de Fourier de $C_{pp}(\tau)$ est appelée bruit relatif en intensité, ou RIN, pour *relative intensity noise* :

$$\mathrm{RIN}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} C_{pp}(\tau) \exp(\mathrm{i}\omega\tau) \mathrm{d}\tau \tag{A.1.4}$$

Pour évaluer le RIN, il est possible d'utiliser un analyseur de spectre. Toutefois, nous disposons d'un oscilloscope pouvant mesurer jusqu'à 1 GHz, ce qui est suffisant étant donné que les plus hautes fréquences générées par le LCC ne dépassent pas quelques centaines de MHz. L'oscilloscope permet de mesurer la trace temporelle de l'intensité du laser ; on accède ensuite au RIN en faisant la transformée de Fourier de l'autocorrélation du signal temporel, ou plus simplement en calculant le carré de la transformée de Fourier du signal temporel. Sur la figure A.1, une mesure du spectre du bruit en courant* débité par le module LCC montre une bande passante à -3 dB

* Il s'agit bien d'une mesure du spectre du bruit en courant, et non du bruit en intensité lumineuse, qui n'a pas pu être mesuré du fait de problèmes expérimentaux avec la diode laser. On fera l'hypothèse que les variations d'intensité lumineuse sont proportionnelles aux variations de courant d'alimentation de la diode, même à ces très hautes fréquences. Cette hypothèse est assez bien validée par la mesure de la figure A.2, qui montre une compatibilité quantitative entre la largeur de l'autocorrélation de l'intensité lumineuse et la bande passante du spectre du courant de modulation, ce qui est détaillé dans le commentaire de la figure A.2.

allant de 10 à 120 MHz. Cette mesure est le carré de la transformée de Fourier de la trace temporelle du courant débité par le LCC, ce courant étant mesuré en mesurant la tension traversant l'impédance interne de l'oscilloscope.

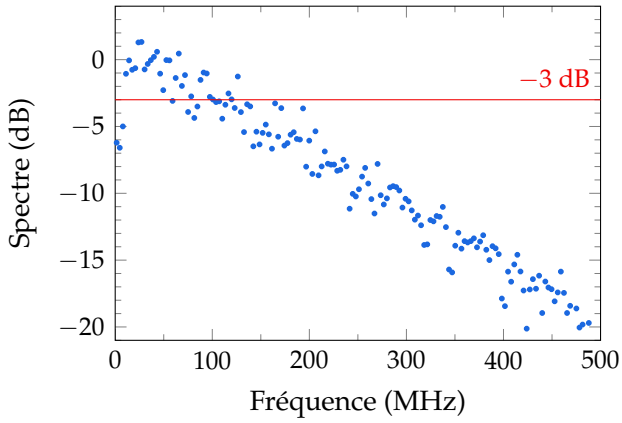


FIGURE A.1 — Spectre du courant de modulation débitée par le module LCC. Bande passante à -3 dB : $[10 \pm 5$ MHz, 120 ± 30 MHz$]$.

Une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ de l'intensité émise par le laser, mesurée à l'aide d'un interféromètre de HBT, est présentée sur la figure A.2. On peut voir l'effet de la modulation sous la forme du maximum d'autocorrélation visible à $\tau = 0$. L'amplitude de ce maximum n'est que de 4%, mais il se détache nettement du bruit ; sa largeur à mi-hauteur est de 4 ± 1 ns. Cette largeur à mi-hauteur correspond à une fréquence de 250 ± 60 MHz, ce qui donne un maximum de bande passante de 125 ± 30 MHz — le facteur $1/2$ provenant du fait que l'on ne considère que les fréquences positives pour la bande passante telle qu'elle a été exprimée précédemment. Sur la figure A.1, nous avions mesuré une bande passante s'arrêtant à 120 ± 30 MHz, ce qui est parfaitement compatible avec la mesure d'autocorrélation effectuée ici.

Notez que nous n'avons pas considéré ici la réponse impulsionnelle des détecteurs du montage HBT. Son impact est en effet négligeable, la largeur de la réponse impulsionnelle étant de 1 ns, moitié moins que la plage d'incertitude sur la largeur ici.

A.2 Mesure de la cohérence du laser modulé

Nous disposons de deux techniques pour mesurer la cohérence du laser modulé. La manière la plus directe est de mesurer la largeur de la raie avec l'interféromètre de Fabry–Pérot présenté à la section 2.3.3 (p. 65). Mais la résolution de l'interféromètre est insuffisante pour mesurer toutes les largeurs de raie, ce qui rend cette méthode assez imprécise. La deuxième méthode, plus indirecte, consiste à utiliser les interférences à deux photons et l'expression de $g^{(1)}(\tau)$ du laser.

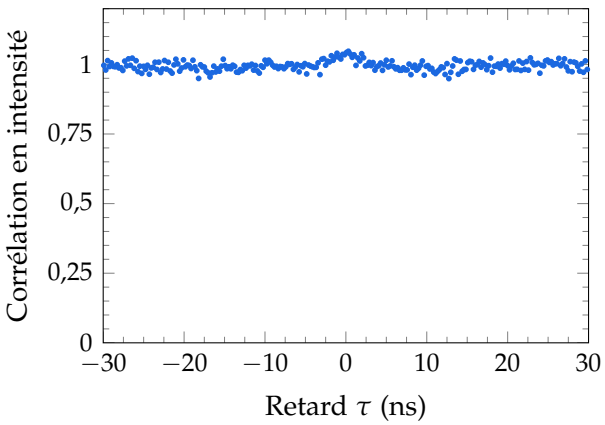


FIGURE A.2 — Mesure d'autocorrélation (HBT) de l'intensité émise par la diode laser modulée avec le module LCC. Largeur à mi-hauteur : 4 ± 1 ns.

Le temps de cohérence du champ émis par le laser est défini comme le temps de déclin T_L de l'exponentielle dans $g^{(1)}(\tau)$:

$$g^{(1)}(\tau) = \mathrm{e}^{-\frac{|\tau|}{T_L}} \tag{A.2.1}$$

En s'appuyant sur le théorème de Wiener–Khintchine, la densité spectrale associée $S(\nu)$ s'écrit :

$$S(\nu) \propto \frac{1}{1 + \left(\frac{2\nu}{\Delta\nu}\right)^2} \tag{A.2.2}$$

où $\Delta\nu = \frac{1}{\pi T_L}$ est la largeur à mi-hauteur.

Dans le cas d'un laser qui possède une raie lorentzienne de largeur $\frac{1}{\pi T_L}$, on peut donc réécrire la formule (4.2.16) :

$$g^{(2X)}(\tau) = 1 - \frac{1}{2} \cdot \left|g^{(1)}(\tau)\right|^2 = 1 - \frac{1}{2} \cdot \mathrm{e}^{-\frac{2|\tau|}{T_L}} \tag{A.2.3}$$

Au final, ce modèle est ajusté sur la mesure pour déterminer T_L, étant donnée une puissance de modulation. La figure A.3 montre la mesure et la courbe ajustée pour une atténuation du LCC de -31 dB. On extrait ainsi un temps de cohérence $T_L = 17{,}0 \pm 0{,}5$ ns.

En répétant la mesure du $g^{(2X)}$ pour les différentes puissances de modulation disponibles, on obtient les points présentés sur la figure A.4. Les mesures établies à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot sont également présentées. La résolution du Fabry–Pérot étant d'environ 10 MHz, ce qui signifie 30 ns en temps de cohérence, il faut soustraire ce temps* du temps mesuré, ce qui donne les points tracés ici. Le désaccord entre les deux méthodes est probablement lié à cette opération de déconvolution, et on préférera utiliser les valeurs extraites de $g^{(2X)}$.

* La fonction d'Airy, qui est la fonction de réponse du Fabry–Pérot, peut être approchée autour d'une

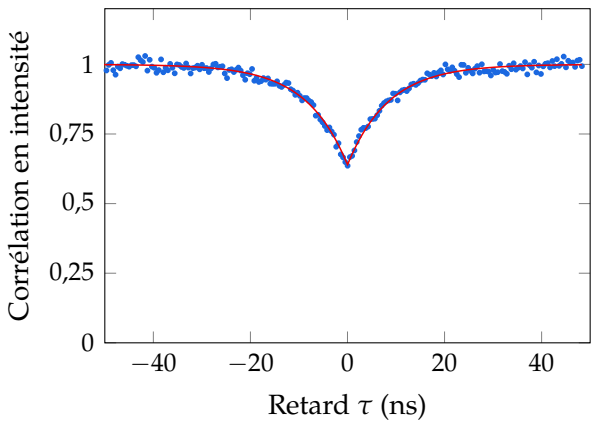


FIGURE A.3 — Mesure de HOM pour le laser seul avec une atténuation du LCC de −31 dB.

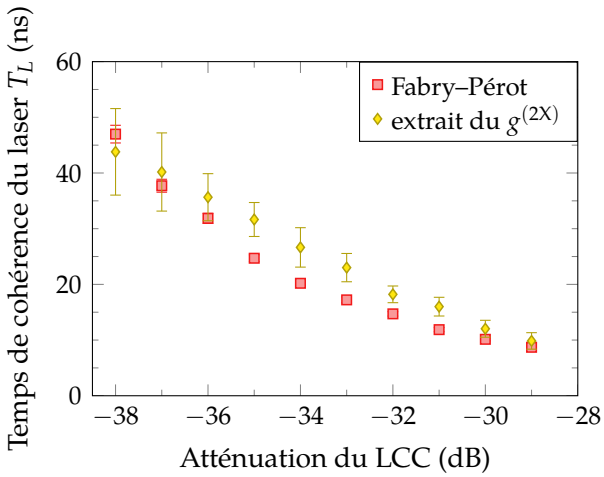


FIGURE A.4 — Mesure du temps de cohérence du laser T_L pour différentes atténuations du LCC, à l'aide des deux méthodes — Fabry–Pérot et $g^{(2X)}$.

résonance par une lorentzienne, et la raie du laser est également une lorentzienne. Or la largeur à mi-hauteur du produit de convolution de deux lorentziennes est la somme de leurs largeurs à mi-hauteur. Pour trouver la largeur de la raie déconvoluée, il faudra donc soustraire à la mesure brute la largeur de la réponse du Fabry–Pérot.

Bibliographie

1. Åkerman, M. E., Chan, W. C. W., Laakkonen, P., Bhatia, S. N. & Ruoslahti, E. Nanocrystal targeting in vivo. *Proceedings of the National Academy of Sciences* **99,** 12617–12621 (10 jan. 2002). doi : 10.1073/pnas.152463399. pmid : 12235356 (cf. p. 22).
2. Ates, S., Ulrich, S. M., Reitzenstein, S., Löffler, A., Forchel, A. & Michler, P. Post-Selected Indistinguishable Photons from the Resonance Fluorescence of a Single Quantum Dot in a Microcavity. *Physical Review Letters* **103,** 167402 (16 oct. 2009). doi : 10.1103/PhysRevLett.103.167402 (cf. p. 14, 15, 132).
3. Basché, T., Moerner, W. E., Orrit, M. & Talon, H. Photon antibunching in the fluorescence of a single dye molecule trapped in a solid. *Physical Review Letters* **69,** 1516–1519 (7 sept. 1992). doi : 10.1103/PhysRevLett.69.1516 (cf. p. 13).
4. Benisty, H., Sotomayor-Torrès, C. M. & Weisbuch, C. Intrinsic mechanism for the poor luminescence properties of quantum-box systems. *Physical Review B* **44,** 10945–10948 (15 nov. 1991). doi : 10.1103/PhysRevB.44.10945 (cf. p. 28).
5. Bennett, C. H., Bessette, F., Brassard, G., Salvail, L. & Smolin, J. Experimental quantum cryptography. *Journal of Cryptology* **5,** 3–28 (jan. 1992). doi : 10.1007/BF00191318 (cf. p. 13).
6. Bentham, C., Itskevich, I. E., Coles, R. J., Royall, B., Clarke, E., O'Hara, J., Prtljaga, N., Fox, A. M., Skolnick, M. S. & Wilson, L. R. On-chip electrically controlled routing of photons from a single quantum dot. *Applied Physics Letters* **106,** 221101 (1er juin 2015). doi : 10.1063/1.4922041 (cf. p. 23).
7. Berthelot, A., Favero, I., Cassabois, G., Voisin, C., Delalande, C., Roussignol, P., Ferreira, R. & Gérard, J. M. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature Physics* **2,** 759–764 (nov. 2006). doi : 10.1038/nphys433 (cf. p. 29).
8. Berthelot, A. *Diffusion spectrale et rétrécissement par le mouvement dans les boîtes quantiques* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 24 oct. 2008) (cf. p. 29).
9. Bockelmann, U. & Bastard, G. Phonon scattering and energy relaxation in two-, one-, and zero-dimensional electron gases. *Physical Review B* **42,** 8947–8951 (15 nov. 1990). doi : 10.1103/PhysRevB.42.8947 (cf. p. 28).
10. Born, M. & Wolf, E. *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light* 6th corrected edition (Pergamon Press, Oxford New York Seoul [etc.], 1993) (cf. p. 55).
11. Borri, P., Langbein, W., Schneider, S., Woggon, U., Sellin, R. L., Ouyang, D. & Bimberg, D. Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters* **87,** 157401 (20 sept. 2001). doi : 10.1103/PhysRevLett.87.157401 (cf. p. 28).
12. Boyd, R. W. *Nonlinear Optics* 3e édition. 640 p. (Academic Press, Amsterdam ; Boston, 11 avr. 2008) (cf. p. 31, 33).

13. Brendel, J., Gisin, N., Tittel, W. & Zbinden, H. Pulsed Energy-Time Entangled Twin-Photon Source for Quantum Communication. *Physical Review Letters* **82,** 2594–2597 (22 mar. 1999). doi : 10.1103/PhysRevLett.82.2594 (cf. p. 176).

14. Bruchez, M., Moronne, M., Gin, P., Weiss, S. & Alivisatos, A. P. Semiconductor Nanocrystals as Fluorescent Biological Labels. *Science* **281,** 2013–2016 (25 sept. 1998). doi : 10.1126/science.281.5385.2013. pmid : 9748157 (cf. p. 22).

15. Bylander, J., Robert-Philip, I. & Abram, I. Interference and correlation of two independent photons. *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics* **22,** 295–301 (fév. 2003). doi : 10.1140/epjd/e2002-00236-6 (cf. p. 15, 129).

16. Carmichael, H. J. & Walls, D. F. Proposal for the measurement of the resonant Stark effect by photon correlation techniques. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics* **9,** L43 (11 mar. 1976). doi : 10.1088/0022-3700/9/4/001 (cf. p. 91).

17. Coe, S., Woo, W.-K., Bawendi, M. & Bulović, V. Electroluminescence from single monolayers of nanocrystals in molecular organic devices. *Nature* **420,** 800–803 (19 déc. 2002). doi : 10.1038/nature01217 (cf. p. 22).

18. Cohen-Tannoudji, C., Dupont-Roc, J. & Grynberg, G. *Processus d'interaction entre photons et atomes* (InterEditions, Paris, 1988) (cf. p. 35).

19. Czerny, M. & Turner, A. F. Über den Astigmatismus bei Spiegelspektrometern. *Zeitschrift für Physik* **61,** 792–797 (1er nov. 1930). doi : 10.1007/BF01340206 (cf. p. 64).

20. Dalibard, J. & Reynaud, S. Correlation signals in resonance fluorescence : interpretation via photon scattering amplitudes. *Journal de Physique* **44,** 1337–1343 (1983). doi : 10.1051/jphys:0198300440120133700 (cf. p. 102, 103, 109).

21. Dalibard, J. *Étude théorique et expérimentale des corrélations temporelles entre photons de fluorescence : effet d'une sélection en fréquence.* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 31 mar. 1981) (cf. p. 102, 103).

22. Diedrich, F. & Walther, H. Nonclassical radiation of a single stored ion. *Physical Review Letters* **58,** 203–206 (19 jan. 1987). doi : 10.1103/PhysRevLett.58.203 (cf. p. 13).

23. Dubertret, B., Skourides, P., Norris, D. J., Noireaux, V., Brivanlou, A. H. & Libchaber, A. In Vivo Imaging of Quantum Dots Encapsulated in Phospholipid Micelles. *Science* **298,** 1759–1762 (29 nov. 2002). doi : 10.1126/science.1077194. pmid : 12459582 (cf. p. 22).

24. Eaglesham, D. J. & Cerullo, M. Dislocation-free Stranski-Krastanow growth of Ge on Si(100). *Physical Review Letters* **64,** 1943–1946 (16 avr. 1990). doi : 10.1103/PhysRevLett.64.1943 (cf. p. 23).

25. Eisler, H.-J., Sundar, V. C., Bawendi, M. G., Walsh, M., Smith, H. I. & Klimov, V. Color-selective semiconductor nanocrystal laser. *Applied Physics Letters* **80,** 4614–4616 (17 juin 2002). doi : 10.1063/1.1485125 (cf. p. 22).

26. Ekert, A. K., Rarity, J. G., Tapster, P. R. & Massimo Palma, G. Practical quantum cryptography based on two-photon interferometry. *Physical Review Letters* **69,** 1293–1295 (31 août 1992). doi : 10.1103/PhysRevLett.69.1293 (cf. p. 13).

27. Ekimov, A. I., Efros, A. L. & Onushchenko, A. A. Quantum size effect in semiconductor microcrystals. *Solid State Communications* **56,** 921–924 (1er déc. 1985). doi : 10.1016/S0038-1098(85)80025-9 (cf. p. 22, 26).

28. Favero, I., Cassabois, G., Ferreira, R., Darson, D., Voisin, C., Tignon, J., Delalande, C., Bastard, G., Roussignol, P. & Gérard, J. M. Acoustic phonon sidebands in the emission line of single InAs/GaAs quantum dots. *Physical Review B* **68,** 233301 (4 déc. 2003). doi : 10.1103/PhysRevB.68.233301 (cf. p. 28).

29. Favero, I. *Décohérence, symétries et relaxation de spin dans les boites quantiques de semiconducteurs.* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 21 oct. 2005) (cf. p. 54).

30. Fearn, H. & Loudon, R. Theory of two-photon interference. *Journal of the Optical Society of America B* **6,** 917 (1er mai 1989). doi : 10.1364/JOSAB.6.000917 (cf. p. 112, 115).

31. Ferreira, R. & Bastard, G. Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots. *Applied Physics Letters* **74,** 2818–2820 (10 mai 1999). doi : 10.1063/1.124024 (cf. p. 27).

32. Ferreira, R. & Bastard, G. *Capture and relaxation in Self- Assembled Semiconductor Quantum Dots : the dot and its environment* (IOP Concise Physics, Morgan & Claypool Publishers, future publication, s.d.) (cf. p. 27).

33. Ferreira, R. & Bastard, G. Intra-dot Auger relaxation in quantum dots. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIB - Mechanics-Physics-Astronomy* **327,** 901–906 (sept. 1999). doi : 10.1016/S1287-4620(99)80153-7 (cf. p. 27).

34. Foster, G. T., Smith, W. P., Reiner, J. E. & Orozco, L. A. Time-dependent electric field fluctuations at the subphoton level. *Physical Review A* **66,** 033807 (16 sept. 2002). doi : 10.1103/PhysRevA.66.033807 (cf. p. 161).

35. Fox, M. *Quantum Optics : An Introduction* 398 p. (OUP Oxford, 27 avr. 2006) (cf. p. 13, 81, 89, 111).

36. Gazzano, O., Michaelis de Vasconcellos, S., Arnold, C., Nowak, A., Galopin, E., Sagnes, I., Lanco, L., Lemaître, A. & Senellart, P. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. *Nature Communications* **4,** 1425 (5 fév. 2013). doi : 10.1038/ncomms2434 (cf. p. 14).

37. Gérard, J. M., Génin, J. B., Lefebvre, J., Moison, J. M., Lebouché, N. & Barthe, F. Optical investigation of the self-organized growth of InAs/GaAs quantum boxes. *Journal of Crystal Growth* **150, Part 1,** 351–356 (1er mai 1995). doi : 10.1016/0022-0248(95)80234-4 (cf. p. 22).

38. Gérard, J. M., Sermage, B., Gayral, B., Legrand, B., Costard, E. & Thierry-Mieg, V. Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity. *Physical Review Letters* **81,** 1110–1113 (3 août 1998). doi : 10.1103/PhysRevLett.81.1110 (cf. p. 14).

39. Gerber, S., Rotter, D., Hennrich, M., Blatt, R., Rohde, F., Schuck, C., Almendros, M., Gehr, R., Dubin, F. & Eschner, J. Quantum interference from remotely trapped ions. *New Journal of Physics* **11,** 013032 (1er jan. 2009). doi : 10.1088/1367-2630/11/1/013032 (cf. p. 122).

40. Gerber, S., Rotter, D., Slodička, L., Eschner, J., Carmichael, H. J. & Blatt, R. Intensity-Field Correlation of Single-Atom Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters* **102,** 183601 (4 mai 2009). doi : 10.1103/PhysRevLett.102.183601 (cf. p. 161).

41. Gisin, N., Ribordy, G., Tittel, W. & Zbinden, H. Quantum cryptography. *Reviews of Modern Physics* **74,** 145–195 (8 mar. 2002). doi : 10.1103/RevModPhys.74.145 (cf. p. 13, 111).

42. Glauber, R. J. The Quantum Theory of Optical Coherence. *Physical Review* **130,** 2529–2539 (15 juin 1963). doi : 10.1103/PhysRev.130.2529 (cf. p. 76, 109).

43. Goldstein, L., Glas, F., Marzin, J. Y., Charasse, M. N. & Roux, G. L. Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices. *Applied Physics Letters* **47,** 1099–1101 (15 nov. 1985). doi : 10.1063/1.96342 (cf. p. 22).

44. Gur, I., Fromer, N. A., Geier, M. L. & Alivisatos, A. P. Air-Stable All-Inorganic Nanocrystal Solar Cells Processed from Solution. *Science* **310,** 462–465 (21 oct. 2005). doi : 10.1126/science.1117908. pmid : 16239470 (cf. p. 22).

45. Halder, M., Beveratos, A., Gisin, N., Scarani, V., Simon, C. & Zbinden, H. Entangling independent photons by time measurement. *Nature Physics* **3,** 692–695 (oct. 2007). doi : 10.1038/nphys700 (cf. p. 176).

46. Hameau, S., Guldner, Y., Verzelen, O., Ferreira, R., Bastard, G., Zeman, J., Lemaître, A. & Gérard, J. M. Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons. *Physical Review Letters* **83,** 4152–4155 (15 nov. 1999). doi : 10.1103/PhysRevLett.83.4152 (cf. p. 28).

47. Hanbury Brown, R. & Twiss, R. Q. A new type of interferometer for use in radio astronomy. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* **45,** 663–682 (1er juil. 1954). doi : 10.1080/14786440708520475 (cf. p. 94).

48. Hanbury Brown, R. & Twiss, R. Q. A Test of a New Type of Stellar Interferometer on Sirius. *Nature* **178,** 1046–1048 (10 nov. 1956). doi : 10.1038/1781046a0 (cf. p. 94).

49. Hanbury Brown, R. & Twiss, R. Q. Correlation between Photons in two Coherent Beams of Light. *Nature* **177,** 27–29 (1er juil. 1956). doi : 10.1038/177027a0 (cf. p. 94).

50. Högele, A., Galland, C., Winger, M. & Imamoğlu, A. Photon Antibunching in the Photoluminescence Spectra of a Single Carbon Nanotube. *Physical Review Letters* **100,** 217401 (27 mai 2008). doi : 10.1103/PhysRevLett.100.217401 (cf. p. 13).

51. Hong, C. K., Ou, Z. Y. & Mandel, L. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Physical Review Letters* **59,** 2044–2046 (2 nov. 1987). doi : 10.1103/PhysRevLett.59.2044 (cf. p. 15, 111, 112, 115, 120).

52. Jelezko, F. & Wrachtrup, J. Single defect centres in diamond : A review. *physica status solidi (a)* **203,** 3207–3225 (1er oct. 2006). doi : 10.1002/pssa.200671403 (cf. p. 13).

53. Jo, M., Mano, T., Abbarchi, M., Kuroda, T., Sakuma, Y. & Sakoda, K. Self-Limiting Growth of Hexagonal and Triangular Quantum Dots on (111)A. *Crystal Growth & Design* **12,** 1411–1415 (7 mar. 2012). doi : 10.1021/cg201513m (cf. p. 23).

54. Kammerer, C. *Spectroscopie Optique de boîtes quantiques uniques : effets de l'environnement* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 17 oct. 2002) (cf. p. 25, 29, 30).

55. Kimble, H. J., Dagenais, M. & Mandel, L. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. *Physical Review Letters* **39,** 691–695 (12 sept. 1977). doi : 10.1103/PhysRevLett.39.691 (cf. p. 13).

56. Kiraz, A., Ehrl, M., Hellerer, T., Müstecaplioğlu, Ö. E., Bräuchle, C. & Zumbusch, A. Indistinguishable Photons from a Single Molecule. *Physical Review Letters* **94,** 223602 (8 juin 2005). doi : 10.1103/PhysRevLett.94.223602 (cf. p. 133).

57. Klimov, V. I., Schwarz, C. J., McBranch, D. W., Leatherdale, C. A. & Bawendi, M. G. Ultrafast dynamics of inter- and intraband transitions in semiconductor nanocrystals : Implications for quantum-dot lasers. *Physical Review B* **60,** R2177–R2180 (15 juil. 1999). doi : 10.1103/PhysRevB.60.R2177 (cf. p. 22).

58. Knill, E., Laflamme, R. & Milburn, G. J. A scheme for efficient quantum computation with linear optics. *Nature* **409,** 46–52 (4 jan. 2001). doi : 10.1038/35051009 (cf. p. 13).

59. Koguchi, N., Takahashi, S. & Chikyow, T. New MBE growth method for InSb quantum well boxes. *Journal of Crystal Growth* **111,** 688–692 (2 mai 1991). doi : 10.1016/0022-0248(91)91064-H (cf. p. 23).

60. Kurtsiefer, C., Mayer, S., Zarda, P. & Weinfurter, H. Stable Solid-State Source of Single Photons. *Physical Review Letters* **85,** 290–293 (10 juil. 2000). doi : 10.1103/PhysRevLett.85.290 (cf. p. 13).

61. Latta, C. *et al.* Confluence of resonant laser excitation and bidirectional quantum-dot nuclear-spin polarization. *Nature Physics* **5,** 758–763 (oct. 2009). doi : 10.1038/nphys1363 (cf. p. 14).

62. Lebreton, A., Abram, I., Braive, R., Sagnes, I., Robert-Philip, I. & Beveratos, A. Unequivocal Differentiation of Coherent and Chaotic Light through Interferometric Photon Correlation Measurements. *Physical Review Letters* **110,** 163603 (16 avr. 2013). doi : 10.1103/PhysRevLett.110.163603 (cf. p. 121).

63. Legero, T., Wilk, T., Hennrich, M., Rempe, G. & Kuhn, A. Quantum Beat of Two Single Photons. *Physical Review Letters* **93,** 070503 (13 août 2004). doi : 10.1103/PhysRevLett.93.070503 (cf. p. 130).

64. Lettow, R., Rezus, Y. L. A., Renn, A., Zumofen, G., Ikonen, E., Götzinger, S. & Sandoghdar, V. Quantum Interference of Tunably Indistinguishable Photons from Remote Organic Molecules. *Physical Review Letters* **104,** 123605 (26 mar. 2010). doi : 10.1103/PhysRevLett.104.123605 (cf. p. 130).

65. Lettow, R. *Interference between indistinguishable photons from remote organic molecules* thèse de doct. (ETH Zürich, Zürich, 2010) (cf. p. 118).

66. Lodahl, P., Floris van Driel, A., Nikolaev, I. S., Irman, A., Overgaag, K., Vanmaekelbergh, D. & Vos, W. L. Controlling the dynamics of spontaneous emission from quantum dots by photonic crystals. *Nature* **430,** 654–657 (5 août 2004). doi : 10.1038/nature02772 (cf. p. 14, 23).

67. Loudon, R. *The Quantum Theory of Light* 454 p. (OUP Oxford, 7 sept. 2000) (cf. p. 115).

68. Magnusdottir, I., Bischoff, S., Uskov, A. V. & Mørk, J. Geometry dependence of Auger carrier capture rates into cone-shaped self-assembled quantum dots. *Physical Review B* **67,** 205326 (30 mai 2003). doi : 10.1103/PhysRevB.67.205326 (cf. p. 27).

69. Magnusdottir, I., Uskov, A. V., Bischoff, S., Tromborg, B. & Mørk, J. One- and two-phonon capture processes in quantum dots. *Journal of Applied Physics* **92,** 5982–5990 (15 nov. 2002). doi : 10.1063/1.1512694 (cf. p. 27).

70. Magyar, G. & Mandel, L. Interference Fringes Produced by Superposition of Two Independent Maser Light Beams. *Nature* **198,** 255–256 (20 avr. 1963). doi : 10.1038/198255a0 (cf. p. 112).

71. Makhonin, M. N., Dixon, J. E., Coles, R. J., Royall, B., Luxmoore, I. J., Clarke, E., Hugues, M., Skolnick, M. S. & Fox, A. M. Waveguide Coupled Resonance Fluorescence from On-Chip Quantum Emitter. *Nano Letters* **14,** 6997–7002 (10 déc. 2014). doi : 10.1021/nl5032937 (cf. p. 14).

72. Malein, R., Santana, T., Zajac, J., Petroff, P. & Gerardot, B. *Screening Nuclear Field Fluctuations in Quantum Dots for Indistinguishable Photon Generation* in (OSA, 2015), FF1B.2. doi : 10.1364/CLEO_QELS.2015.FF1B.2 (cf. p. 14).

73. Mandel, L. Coherence and indistinguishability. *Optics Letters* **16,** 1882–1883 (1er déc. 1991). doi : 10.1364/OL.16.001882 (cf. p. 14).

74. Mandel, L. Quantum effects in one-photon and two-photon interference. *Reviews of Modern Physics* **71,** S274–S282 (1999). doi : 10.1103/RevModPhys.71.S274 (cf. p. 114).

75. Mandel, L. & Wolf, E. *Optical Coherence and Quantum Optics* 1200 p. (Cambridge University Press, 29 sept. 1995) (cf. p. 82, 89, 94, 115, 116).

76. Melet, R., Voliotis, V., Enderlin, A., Roditchev, D., Wang, X. L., Guillet, T. & Grousson, R. Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime. *Physical Review B* **78,** 073301 (5 août 2008). doi : 10.1103/PhysRevB.78.073301 (cf. p. 14).

77. Michler, P., Kiraz, A., Becher, C., Schoenfeld, W. V., Petroff, P. M., Zhang, L., Hu, E. & Imamoglu, A. A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device. *Science* **290,** 2282–2285 (22 déc. 2000). doi : 10.1126/science.290.5500.2282. pmid : 11125136 (cf. p. 13).

78. Michler, P. *Single Quantum Dots : Fundamentals, Applications and New Concepts* 370 p. (Springer Science & Business Media, 9 déc. 2003) (cf. p. 68, 92).

79. Mollow, B. R. Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems. *Physical Review* **188,** 1969–1975 (25 déc. 1969). doi : 10.1103/PhysRev.188.1969 (cf. p. 87).

80. Muller, A., Flagg, E. B., Bianucci, P., Wang, X. Y., Deppe, D. G., Ma, W., Zhang, J., Salamo, G. J., Xiao, M. & Shih, C. K. Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity. *Physical Review Letters* **99,** 187402 (1er nov. 2007). doi : 10.1103/PhysRevLett.99.187402 (cf. p. 14, 53).

81. Murray, C. B., Norris, D. J. & Bawendi, M. G. Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E = sulfur, selenium, tellurium) semiconductor nanocrystallites. *Journal of the American Chemical Society* **115,** 8706–8715 (1er sept. 1993). doi : 10.1021/ja00072a025 (cf. p. 22).

82. Nguyen, H. S., Sallen, G., Voisin, C., Roussignol, P., Diederichs, C. & Cassabois, G. Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots. *Physical Review Letters* **108,** 057401 (30 jan. 2012). doi : 10.1103/PhysRevLett.108.057401 (cf. p. 14).

83. Nguyen, H. S., Sallen, G., Voisin, C., Roussignol, P., Diederichs, C. & Cassabois, G. Ultracoherent single photon source. *Applied Physics Letters* **99,** 261904 (26 déc. 2011). doi : 10.1063/1.3672034 (cf. p. 14, 16, 53).

84. Nguyen, H. S. *Contrôle optique de l'émission résonnante de boîtes quantiques semiconductrices* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 9 déc. 2011) (cf. p. 54, 69, 78, 79, 91).

85. Nick Vamivakas, A., Zhao, Y., Lu, C.-Y. & Atatüre, M. Spin-resolved quantum-dot resonance fluorescence. *Nature Physics* **5,** 198–202 (mar. 2009). doi : 10.1038/nphys1182 (cf. p. 14, 53).

86. Nielsen, M. A. & Chuang, I. L. *Quantum computation and quantum information* (Cambridge University Press, Cambridge New York, 2000) (cf. p. 111).

87. Ou, Z. Y., Hong, C. K. & Mandel, L. Relation between input and output states for a beam splitter. *Optics Communications* **63,** 118–122 (15 juil. 1987). doi : 10.1016/0030-4018(87)90271-9 (cf. p. 116).

88. Patel, R. B., Bennett, A. J., Cooper, K., Atkinson, P., Nicoll, C. A., Ritchie, D. A. & Shields, A. J. Postselective Two-Photon Interference from a Continuous Nonclassical Stream of Photons Emitted by a Quantum Dot. *Physical Review Letters* **100,** 207405 (23 mai 2008). doi : 10.1103/PhysRevLett.100.207405 (cf. p. 15, 126, 132, 133).

89. Patel, R. B., Bennett, A. J., Farrer, I., Nicoll, C. A., Ritchie, D. A. & Shields, A. J. Two-photon interference of the emission from electrically tunable remote quantum dots. *Nature Photonics* **4,** 632–635 (sept. 2010). doi : 10.1038/nphoton.2010.161 (cf. p. 15).

90. Paul, H. Interference between independent photons. *Reviews of Modern Physics* **58,** 209–231 (1er jan. 1986). doi : 10.1103/RevModPhys.58.209 (cf. p. 112).

91. Paul, H. Photon antibunching. *Reviews of Modern Physics* **54,** 1061–1102 (1er oct. 1982). doi : 10.1103/RevModPhys.54.1061 (cf. p. 91, 103).

92. Peng, Z. A. & Peng, X. Formation of High-Quality CdTe, CdSe, and CdS Nanocrystals Using CdO as Precursor. *Journal of the American Chemical Society* **123,** 183–184 (1er jan. 2001). doi : 10.1021/ja003633m (cf. p. 22).

93. Pfleegor, R. L. & Mandel, L. Interference of Independent Photon Beams. *Physical Review* **159,** 1084–1088 (25 juil. 1967). doi : 10.1103/PhysRev.159.1084 (cf. p. 112, 113).

94. Proux, R., Maragkou, M., Baudin, E., Voisin, C., Roussignol, P. & Diederichs, C. Measuring the Photon Coalescence Time Window in the Continuous-Wave Regime for Resonantly Driven Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters* **114,** 067401 (10 fév. 2015). doi : 10.1103/PhysRevLett.114.067401 (cf. p. 135).

95. Reithmaier, J. P., Sęk, G., Löffler, A., Hofmann, C., Kuhn, S., Reitzenstein, S., Keldysh, L. V., Kulakovskii, V. D., Reinecke, T. L. & Forchel, A. Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system. *Nature* **432,** 197–200 (11 nov. 2004). doi : 10.1038/nature02969 (cf. p. 23).

96. Santori, C., Fattal, D., Vučković, J., Solomon, G. S. & Yamamoto, Y. Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature* **419,** 594–597 (10 oct. 2002). doi : 10.1038/nature01086 (cf. p. 15, 129, 130).

97. Santori, C., Fattal, D. & Yamamoto, Y. *Single-photon Devices and Applications* 239 p. (John Wiley & Sons, 11 oct. 2010) (cf. p. 13).

98. Scully, M. O. & Zubairy, M. S. *Quantum optics* (Cambridge University Press, Cambridge, 1997) (cf. p. 76, 78, 79, 91, 94).

99. Somaschini, C., Bietti, S., Koguchi, N. & Sanguinetti, S. Fabrication of Multiple Concentric Nanoring Structures. *Nano Letters* **9,** 3419–3424 (14 oct. 2009). doi : 10.1021/nl901493f (cf. p. 23).

100. Stranski, I. N. & Krastanov, L. *Abhandlungen der Mathematisch Naturwissenschaftlichen Klasse IIb. Akademie der Wissenschaften Wien* **146,** 797–810 (1938) (cf. p. 22).

101. Svelto, O. & Hanna, D. C. *Principles of lasers* 4th edition (Plenum Press, New York, 1998) (cf. p. 178).

102. Tessier, M. D., Dupont, D., De Nolf, K., De Roo, J. & Hens, Z. Economic and Size-Tunable Synthesis of InP/ZnE (E = S, Se) Colloidal Quantum Dots. *Chemistry of Materials* **27,** 4893–4898 (14 juil. 2015). doi : 10.1021/acs.chemmater.5b02138 (cf. p. 22).

103. Toda, Y., Moriwaki, O., Nishioka, M. & Arakawa, Y. Efficient Carrier Relaxation Mechanism in InGaAs/GaAs Self-Assembled Quantum Dots Based on the Existence of Continuum States. *Physical Review Letters* **82,** 4114–4117 (17 mai 1999). doi : 10.1103/PhysRevLett.82.4114 (cf. p. 25).

104. Uskov, A. V., McInerney, J., Adler, F., Schweizer, H. & Pilkuhn, M. H. Auger carrier capture kinetics in self-assembled quantum dot structures. *Applied Physics Letters* **72,** 58–60 (5 jan. 1998). doi : 10.1063/1.120643 (cf. p. 27).

105. Vahala, K. J. Optical microcavities. *Nature* **424,** 839–846 (14 août 2003). doi : 10.1038/nature01939 (cf. p. 14).

106. Vasanelli, A. *Transitions optiques interbandes et intrabandes dans les boites quantiques simples et couplées verticalement* thèse de doct. (Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 17 juil. 2002) (cf. p. 25, 26).

107. Verzelen, O., Ferreira, R. & Bastard, G. Excitonic Polarons in Semiconductor Quantum Dots. *Physical Review Letters* **88,** 146803 (26 mar. 2002). doi : 10.1103/PhysRevLett.88.146803 (cf. p. 28).

108. Verzelen, O., Ferreira, R. & Bastard, G. Polaron lifetime and energy relaxation in semiconductor quantum dots. *Physical Review B* **62,** R4809–R4812 (15 août 2000). doi : 10.1103/PhysRevB.62.R4809 (cf. p. 28).

109. Vogel, W. Squeezing and anomalous moments in resonance fluorescence. *Physical Review Letters* **67,** 2450–2452 (28 oct. 1991). doi : 10.1103/PhysRevLett.67.2450 (cf. p. 161).

110. Watanabe, K., Koguchi, N. & Gotoh, Y. Fabrication of GaAs Quantum Dots by Modified Droplet Epitaxy. *Japanese Journal of Applied Physics* **39,** L79–L81 (Part 2, No. 2A 1er fév. 2000). doi : 10.1143/JJAP.39.L79 (cf. p. 23).

111. Weiler, S., Stojanovic, D., Ulrich, S. M., Jetter, M. & Michler, P. Postselected indistinguishable single-photon emission from the Mollow triplet sidebands of a resonantly excited quantum dot. *Physical Review B* **87,** 241302 (10 juin 2013). doi : 10.1103/PhysRevB.87.241302 (cf. p. 132, 133).

112. Xin, S. H., Wang, P. D., Yin, A., Kim, C., Dobrowolska, M., Merz, J. L. & Furdyna, J. K. Formation of self-assembling CdSe quantum dots on ZnSe by molecular beam epitaxy. *Applied Physics Letters* **69,** 3884–3886 (16 déc. 1996). doi : 10.1063/1.117558 (cf. p. 23).

113. Zaidi, H. R. Application of a diagram technique to the problem of resonance fluorescence from strongly driven two level atoms. *Canadian Journal of Physics* **59,** 737–749 (1er juin 1981). doi : 10.1139/p81-096 (cf. p. 105).

114. Zaitsev, A. M. *Optical Properties of Diamond* (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2001) (cf. p. 13).

115. Zou, X. T. & Mandel, L. Photon-antibunching and sub-Poissonian photon statistics. *Physical Review A* **41,** 475–476 (1er jan. 1990). doi : 10.1103/PhysRevA.41.475 (cf. p. 90).

116. Zrenner, A., Beham, E., Stufler, S., Findeis, F., Bichler, M. & Abstreiter, G. Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode. *Nature* **418,** 612–614 (8 août 2002). doi : 10.1038/nature00912 (cf. p. 23).

117. Żukowski, M., Zeilinger, A., Horne, M. A. & Ekert, A. K. "Event-ready-detectors" Bell experiment via entanglement swapping. *Physical Review Letters* **71,** 4287–4290 (27 déc. 1993). doi : 10.1103/PhysRevLett.71.4287 (cf. p. 176).

Indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation résonnante continue

Les boîtes quantiques sont des sources de photons uniques prometteuses pour les réseaux d'information quantique, qui peuvent être intégrées dans des circuits photoniques et s'appuyer sur des technologies de semi-conducteur éprouvées. Dans ce contexte, ce travail se concentre sur les propriétés d'indiscernabilité des photons émis par une boîte quantique semiconductrice sous excitation résonnante. Nous utilisons une configuration particulière où les boîtes sont insérées dans une microcavité planaire permettant de s'affranchir du fond de diffusion parasite du laser d'excitation et d'améliorer la collection du signal d'émission. Nous pouvons ainsi explorer un régime de très basse puissance, où les photons d'excitation sont diffusés élastiquement sur la transition fondamentale de la boîte quantique (régime de diffusion Rayleigh résonnante). Dans ce régime, la cohérence du laser d'excitation est transmise aux photons émis, faisant des boîtes quantiques une source de photons uniques avec une cohérence extrêmement longue.

Les propriétés d'indiscernabilité sont étudiées en utilisant les interférences à deux photons (coalescence) dans un interféromètre de Hong–Ou–Mandel. Une étude expérimentale complète de l'indiscernabilité est présentée en fonction de la puissance d'excitation ainsi que du temps de cohérence du laser d'excitation. Elle montre en particulier l'effet de la diffusion élastique dans la limite de basse puissance d'excitation. Il apparaît qu'une nouvelle caractéristique quantitative doit être introduite afin d'estimer l'indiscernabilité en tant que phénomène temporel, un aspect particulièrement important lorsque les émetteurs sont des sources continues de photons.

Mots-clés : boîte quantique InAs/GaAs, système à deux niveaux, excitation résonnante, photons uniques, photons indiscernables, Hong–Ou–Mandel.

Indistinguishability of the photons emitted by a semiconductor quantum dot under continuous-wave resonant excitation

Quantum dots are good candidates as single photon emitters for quantum information networks, facilitating their integration in photonic circuits based on well known semiconductor technology. In this context, this work focuses on the indistinguishability of the photons emitted by semiconductor quantum dots excited resonantly. We use a peculiar configuration where the quantum dots are embedded in a planar microcavity, allowing for better excitation and collection efficiencies. We are then able to investigate very low excitation power regimes, where the photons are elastically scattered by the fundamental transition of the quantum dot (Resonant Rayleigh Scattering). In this regime, the coherence of the excitation laser is imprinted on the emitted photons, making the quantum dot a source of single photons with a very long coherence.

The indistinguishability is investigated by using a Hong–Ou–Mandel interferometer to perform two-photon interference. We carry out a comprehensive experimental study of the excitation power dependence of the indistinguishability as well as its dependence on the excitation laser coherence, which shows the important role of elastic scattering in the low excitation power limit. It appears that a new figure of merit needs to be introduced to assess the indistinguishability as a temporal phenomenon, an aspect which is particularly relevant when dealing with continuous-wave excitation.

Keywords: InAs/GaAs quantum dot, two-level system, resonant excitation, single photons, indistinguishable photons, Hong–Ou–Mandel.