



HAL
open science

Propriétés optiques de boîtes quantiques semiconductrices intégrées dans des antennes à fil photonique

Romain Fons

► **To cite this version:**

Romain Fons. Propriétés optiques de boîtes quantiques semiconductrices intégrées dans des antennes à fil photonique. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université Grenoble Alpes [2020-..], 2020. Français. NNT : 2020GRALY053 . tel-03203777

HAL Id: tel-03203777

<https://theses.hal.science/tel-03203777v1>

Submitted on 21 Apr 2021

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

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

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ GRENOBLE ALPES

Spécialité : Physique de la Matière Condensée et du Rayonnement

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Romain FONS

Thèse dirigée par **Julien CLAUDON**, Chercheur CEA, Université Grenoble Alpes
et codirigée par **Jean michel GERARD**, Chercheur CEA, Université Grenoble Alpes

préparée au sein du **Laboratoire PHotonique, ELectronique et Ingénierie QuantiqueS**
dans l'**École Doctorale Physique**

Propriétés optiques de boîtes quantiques semiconductrices intégrées dans des antennes à fil photonique

Optical properties of semiconductor quantum dots embedded in photonic wire antennas

Thèse soutenue publiquement le **16 décembre 2020**,

Composition du Jury :

Monsieur Nicolas CHAUVIN

CHARGE DE RECHERCHE, CNRS, Rapporteur

Monsieur Loïc LANCO

MAITRE DE CONFERENCE, Université Paris-Diderot, Rapporteur

Madame Valia VOLIOTIS

PROFESSEUR DES UNIVERSITES, Sorbonne Université, Examinatrice

Monsieur Jean-Phillippe POIZAT

DIRECTEUR DE RECHERCHE, CNRS, Président du jury



Remerciements

Après plus de quatre années c'est à mon tour d'écrire ces quelques mots et sereinement tourner une très belle page de ma vie. Mener à bien une thèse n'est pas une chose aisée et demande une grosse quantité de travail. Néanmoins je n'aurais pas pu la mener à bien sans toutes les personnes qui m'ont entouré et aidé, de près ou de loin, durant mon parcours. C'est avec un plaisir ému que je veux leur signifier ici toute ma gratitude.

Commençons par le commencement. Étant dans ma dernière année de Master et suivant ses cours en optique quantique, c'est Jean-Michel Gérard qui m'a proposé ce sujet. M'ouvrant les portes du laboratoire NPSC, il m'a accordé toute sa confiance. Puis il a su m'accompagner en tant que co-directeur durant ma thèse. Son expérience, ses compétences scientifiques et sociales ont été un vrai plus pour moi. Je le remercie infiniment pour tout ça.

Je ne peux pas continuer sans remercier celui qui m'a suivi tout au long de ma thèse, mon directeur de thèse Julien Claudon. Il a toujours été là quand j'en ressentais le besoin, m'apportant son recul et sa culture dans le domaine des émetteurs de photons uniques. J'admire sa rigueur et sa patience avec lesquels il a fait preuve pour me pousser et m'aiguiller pour que je prenne les bonnes directions. On a une chose en commun, le plaisir de passer des heures à dérouler des calculs analytiques avec un bon vieux crayon et une épaisse liasse de feuilles en papier. J'ai adoré discuter de ces mêmes calculs et pouvoir développer un modèle théorique complet, en particulier lors de mon travail sur les mécanismes de spin-flip. Il m'a très vite donné toute sa confiance, ce qui m'a permis par conséquent d'acquérir une grande confiance en moi-même. Je ne pense pas qu'un doctorant peut rêver meilleur directeur, tant sur le plan scientifique qu'humain. Merci mille fois Julien.

En plus de mes deux directeurs de thèse, je veux adresser un grand merci à toute mon équipe de recherche, en particulier à Joël Bleuse qui m'a donné toutes les clefs pour pouvoir m'épanouir sur mon banc d'optique. Avant de commencer cette thèse je n'étais pas très dégourdi en ce qui concerne les expériences d'optique mais il a su me transmettre sa passion en la matière. J'ai acquis grâce à sa rigueur, parfois dure mais toujours juste, une grande expertise en spectroscopie fine. Cela a été un réel honneur de pouvoir me former à ses cotés. Je tiens également à remercier Petr Stepanov. Il était en post-doc lorsque je suis arrivé dans l'équipe. Il est parti du côté du CNRS assez rapidement mais pendant ces quelques semaines il m'a transmis toute son expérience sur les mesures en champ lointain. Au bout de quelques temps, mon équipe s'est agrandie avec Alberto (post-doc) et Saptarshi (thésard). Alberto m'a été d'une grande aide expérimentale, surtout à la fin de mon parcours lorsque le temps jouait contre moi. J'ai eu beaucoup de plaisir à accueillir et former Saptarshi sur les expériences de photo-luminescence. Il a été un vrai compagnon de bureau, son sens de l'humour, son

accent indien, sa bonne humeur m'ont permis d'aller au labo toujours avec le sourire. Ces moments vont me manquer. Plus largement je tiens à remercier toute l'équipe NPSC qui a donné, donne et donnera, j'en suis sûr, une ambiance de travail et de partage exceptionnelle. Merci à Régis, Bruno & Bruno, Yoann, Christophe, Jean et tous les autres permanents pour tous ces cafés, viennoiseries et gâteaux que l'on a partagé. Ce fut un plaisir de vous côtoyer pendant ces quelques années.

Je voudrais également remercier les membres de mon jury qui ont bien voulu me donner leur temps pour lire mon manuscrit, le commenter avec soin et m'écouter lors de ma soutenance. Un grand merci pour Jean-Phillippe Poizat, directeur de recherche à l'institut Néel, pour avoir présidé le jury de thèse. Ce fut un plaisir de pouvoir le côtoyer au sein de la grande famille NPSC. Je suis très reconnaissant à Nicolas Chauvin et à Loïc Lanco d'avoir accepté d'être rapporteurs de mon travail, et également à Valia Voliotis qui m'a fait le plaisir d'être examinatrice. Je ne les connais que très peu mais leurs commentaires avisés et leur enthousiasme à l'égard de mes travaux m'ont vraiment touché. Vous avez conclu ce long périple d'une très belle manière.

Au cours de ma thèse, j'ai eu la chance de réaliser des séjours dans l'équipe de Guillaume Cassabois à Montpellier. Ce fut à chaque fois un vrai plaisir de m'y rendre. Je le remercie chaleureusement pour l'accueil que son équipe et lui même ont fait preuve envers moi. De plus je me suis beaucoup appuyé sur les travaux de Guillaume pour comprendre la physique sous-jacente à mes travaux et pouvoir écrire mon manuscrit. Je le remercie tout particulièrement pour cette aide précieuse.

Ma thèse, et plus particulièrement mon travail sur la méthode de localisation tout optique n'aurait pas pu aboutir sans l'étroite collaboration de mon équipe avec celle de Niels Gregersen du DTU Fotonik au Danemark. Alors que je n'arrivais pas à comprendre mes résultats expérimentaux, son thésard Andreas Osterkryger est venu passer quatre mois auprès de notre équipe à Grenoble. Ses connaissances théoriques et son expertise en simulation ont pu débloquent la situation. Ils ont tous les deux participé à un des grands moments de ma thèse, un moment où un chercheur expérimentateur tel que je me définis parvient à comprendre profondément son travail et où se concrétisent des mois de mesures expérimentales. Merci infiniment à eux et plus particulièrement à Andreas avec lequel j'ai partagé, avec joie, mon bureau pendant cette période.

L'équipe NPSC ne peut exister sans tous les post-docs, doctorants et stagiaires qui la composent. Je veux tous vous remercier pour toutes les aventures que l'on a passé ensemble. J'ai rencontré ici des personnes uniques venant des quatre coins de la planète et bien plus que des collègues, ils ont été et seront de vrais amis. Je pense évidemment à Marion et Mada avec qui cela n'avait pas très bien commencé... mais qui sont devenues mes meilleures partenaires de crime. Merci Marion pour m'avoir mis à l'escalade, un monde que je ne connaissais pas et qui, maintenant, me passionne. Mada, merci pour toutes nos discussions pas très catholiques et tes talents dans les fourneaux qui a fait plaisir à ma gourmandise (et je pense à celle de tous les autres). La cuvée 2016 a donnée de sacrés docteurs et je suis sûr que les suivantes seront à la hauteur. Un grand merci à Akanksha pour ta bonne humeur constante, Maria pour nos discussions sur les sports extrêmes, Akhilou pour ta profonde gentillesse, Vincent

et Camille pour tous les cafés-clopes qui ont remplis mes pauses avec souvent beaucoup de délires, Anjali pour ta fraîcheur de vivre et tes papouilles, Alex pour ton sens de l'humour, Nathaniel pour nos parties souvent débiles de D&D. J'en oublie mais ils ont tous imprimé des souvenirs indélébiles en moi. Mille fois merci les H2Kids !

Pour finir je tiens à remercier toutes les personnes en dehors du labo. Cela fait maintenant plus de quatre années que je vis avec mes colocs, Luca, Pape, Roméo et Titiksha qui ont fait place à Jovian, et je suis bien obligé d'inclure Big D et Sébastien. Ils ont été pour moi ma deuxième famille ici à Grenoble et je veux les remercier de tout mon cœur pour avoir réussi à me supporter et surtout pour tous les délires, jeux, fêtes et bien plus que l'on a partagé tous ensemble. Un profond merci à Maria qui m'a poussé avec amour dans mes moments de joies et parfois plus sombres. Je n'oublie évidemment pas mes amis niçois qui ont depuis de très nombreuses années participé à mon bonheur et à ma réussite. Je veux aussi adresser un merci difficilement exprimable à ma famille et à mes parents qui ont toujours cru en moi et m'ont toujours supporté dans l'ensemble de mon parcours. Mon père m'a donné ce goût et cet amour pour les sciences. Ma mère, outre tout l'amour et la force qu'elle m'a donné, m'a permis d'être l'homme que je suis aujourd'hui. Je suis très fier d'être devenu docteur sous vos yeux. Un dernier remerciement rempli d'amour pour Martina qui partage maintenant ma vie. Tu m'a accompagné avec force et passion lors de la dernière ligne droite de ce travail et j'espère que tu m'accompagnera encore longtemps.

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	v
Table des figures	ix
Liste des tableaux	xi
Introduction	1
I Boîtes quantiques auto-assemblées et structures photoniques	7
1 Propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs	10
1.1 Morphologie et synthèse des boîtes quantiques	10
1.1.1 Croissance des boîtes quantiques	10
1.1.2 Propriétés morphologiques	12
1.2 États électroniques	12
1.2.1 Structure de bandes des matériaux III-V	12
1.2.2 États électroniques de la couche de mouillage	16
1.2.3 États électroniques des boîtes quantiques InAs/GaAs	17
1.3 Propriétés optiques d'une boîte quantique	19
1.3.1 Représentation des états de paire électron-trou	19
1.3.2 Règles de sélection optique et absorption	20
1.3.3 Absorption optique du système boîte quantique - couche de mouillage	21
1.3.4 Excitation non résonante de la photoluminescence	22
1.4 Structure fine des différents complexes excitoniques	24
1.4.1 Structure fine de l'exciton neutre	24
1.4.2 Structure fine de l'émission du bi-exciton neutre	26
1.4.3 Structure fine des trions positifs et négatifs	27
1.5 Conclusion intermédiaire	28
2 Structures photoniques pour le contrôle de l'émission spontanée	29
2.1 Règle d'or de Fermi - Taux d'émission spontanée	29
2.2 Émission spontanée dans un matériau massif	31
2.3 Microcavités optiques	32
2.3.1 Taux d'émission dans un mode de cavité	32
2.3.2 Quelques exemples de cavités optiques	33
2.3.3 Avantages et limites des micro-cavités optiques	35

2.4	Guides d'ondes	36
2.4.1	Taux d'émission dans un mode guidé	37
2.4.2	Quelques exemples de guides d'ondes à fort β	38
2.5	Conclusion	41
II Antennes à fil photonique		43
1	Émission spontanée dans un fil photonique infini	45
1.1	Modes guidés par un cylindre diélectrique	45
1.1.1	Structure des modes guidés	45
1.1.2	Familles de modes et conditions d'existence	48
1.2	Émission spontanée dans les modes guidés	52
1.3	Émission spontanée dans les modes d'espace libre	54
1.3.1	Écrantage diélectrique	54
1.3.2	Modes quasi-guidés	57
1.4	Fraction couplée au mode fondamental : facteur β	58
1.4.1	Modèle de l'émetteur	58
1.4.2	Facteur β	58
2	Antenne à fil photonique	60
2.1	Modèle Fabry-Perot	60
2.2	Conception de l'antenne	63
3	Échantillon étudié durant la thèse	65
3.1	Nanobafabrication	65
3.2	Géométrie de l'antenne étudiée au Chapitre III	69
3.2.1	Anisotropie de gravure et ellipticité des fils	69
3.2.2	Géométrie de la couche de passivation — Coupes FIB	71
4	Conclusion	72
III Détermination optique de la position radiale de boîtes quantiques intégrées dans un fil photonique		75
1	Introduction	77
2	Article dans sa version originale	78
3	Annexe : Données additionnelles	90
4	Conclusion	93
IV Étude d'une source de décohérence : le spin-flip entre états excitoniques		95
1	Une structure photonique anisotrope pour révéler les processus de spin-flip	97
1.1	Processus de spin-flip de l'exciton neutre	97
1.2	Lien entre polarisation de l'émission excitonique et spin-flips dans une BQ anisotrope	98
1.3	Fil photonique à section elliptique : une structure photonique anisotrope	100
1.4	Boîte quantique étudiée	102
2	Modèle de l'émetteur et protocole de l'étude	104
2.1	Modèle	104
2.2	Protocole de l'étude	106
3	Émission du bi-exciton	108
3.1	Dynamique de recombinaison de l'état bi-excitonique	108
3.2	Degré de polarisation linéaire de l'émission bi-excitonique	110

3.3	Conclusion intermédiaire	112
4	Degré de polarisation linéaire de l'exciton	112
4.1	Expression théorique de $\mathbf{L}_\mathbf{x}$	112
4.2	Influence de la puissance d'excitation à $T = 5$ K	115
4.3	Effet de la température	118
4.4	Conclusion intermédiaire	119
5	Temps de vie des états $ H\rangle$ et $ V\rangle$	119
5.1	Modèle analytique	119
5.2	Résultats expérimentaux	123
6	Conclusion	127
	Conclusion et Perspectives	131
	Références	135

Table des figures

I.1	Représentation schématique de la croissance de type Stranki-Krastanov	11
I.2	Boîte quantique auto-assemblée InAs/GaAs	12
I.3	Structure de bandes des semiconducteurs à gap direct au voisinage du point Γ	14
I.4	Effet de la contrainte sur les semiconducteurs III-V à gap direct au voisinage du point Γ	15
I.5	Densité d'états de la couche de mouillage.	17
I.6	Schéma de niveaux dans une boîte quantique	18
I.7	Densité d'états d'une boîte quantique auto-assemblée InAs/GaAs	19
I.8	Calcul du spectre d'absorption interbande d'une boîte quantique unique	22
I.9	Représentation schématique d'une expérience de photoluminescence sous excitation non résonante	23
I.10	Les complexes excitoniques du niveau S d'une boîte quantique	24
I.11	Structure fine de l'exciton neutre selon la symétrie de la boîte	26
I.12	Cascade radiative du bi-exciton neutre	27
I.13	Recombinaison radiative des trions dans la représentation électron-trou	28
I.14	Exemples de micro-cavité optiques	35
I.15	Exemples de guides d'ondes	39
II.1	Géométrie du guide d'onde	45
II.2	Indice effectif des premiers modes guidés dans un fil photonique	48
II.3	Cartes de l'amplitude des composantes E_r , E_θ et E_z associées aux modes HE_{11} , TE_{01} et TM_{01}	51
II.4	Émission spontanée pour un émetteur sur l'axe	53
II.5	Émission spontanée pour un émetteur hors axe	54
II.6	Écrantage diélectrique dans la limite électrostatique	56
II.7	Facteur β pour un émetteur isotrope dans un fil semi-infini GaAs	59
II.8	Schéma illustrant le modèle Fabry-Perot	61
II.9	Antennes à fil photonique	64
II.10	Premières étapes de la fabrication	66
II.11	Définition de l'antenne	67
II.12	Échantillon réalisé	68
II.13	Image MEB de la structure étudiée au chapitre III	70
II.14	Coupes FIB et géométrie du cœur de l'antenne	71
III.1	Principe de localisation tout-optique	80
III.2	L'antenne photonique à nano-fil	81
III.3	Microscopie à imagerie de Fourier	83

III.4 Émission en champ lointain sur boîtes quantiques uniques	84
III.5 Carte des positions transverses des trois BQs	85
III.6 Taux d'émission spontanée normalisés en fonction du diamètre réduit d/λ	86
III.7 Caractérisation optique des trois raies individuelles QD1, QD2 et QD3	90
III.8 Mesures de temps de vie des trois BQs	91
III.9 Transmission de l'objectif de microscope	92
III.10 Émission en champ lointain résolue en angle d'une antenne mono-mode	93
IV.1 Spin-flips dans un modèle simple.	99
IV.2 Fil photonique à section elliptique	100
IV.3 Image MEB de la structure étudiée	101
IV.4 Spectre de photoluminescence de l'antenne photonique étudiée	102
IV.5 Structure fine des raies X et XX	103
IV.6 Modèle excitonique complet	104
IV.7 Cartes du champ électrique transverse associé premiers modes guidés d'une antenne à base elliptique	105
IV.8 Réponse impulsionnelle du dispositif de détection	109
IV.9 Dynamique de recombinaison radiative de l'état $ XX\rangle$	110
IV.10 Degré de polarisation linéaire de l'émission du bi-exciton	111
IV.11 Effet de la puissance d'excitation sur le degré de polarisation linéaire	117
IV.12 Effet de la température sur le degré de polarisation linéaire	118
IV.13 Mesures de temps vie de l'état excitonique résolues en temps et en polarisation	124
IV.14 Effet de la température sur les processus de spin-flip	127

Liste des tableaux

I.1	Principales caractéristiques des semi-conducteurs InAs et GaAs	10
II.1	Diamètre réduit critique pour les premiers modes guidés	50
II.2	Dimensions externes du fil selon deux directions orthogonales	70
II.3	Dimensions du cœur GaAs du fil photonique dans l'approximation d'un fil à géométrie cylindrique	72
III.1	Taux de recombinaison radiative	85
IV.1	L_{XX} pour différentes températures T	112
IV.2	Détermination de $\gamma_{b\downarrow}(0)$ pour différentes températures T	118
IV.3	Détermination des taux de spin-flip γ_b , γ_{\downarrow} et γ_{\uparrow} pour différentes températures T	126

Introduction

Les technologies de l'information quantique visent à utiliser les lois de la mécanique quantique (principe de superposition, enchevêtrement) pour communiquer ou traiter de l'information. Elles permettraient par exemple de transmettre de l'information de manière intrinsèquement sûre, ou de réaliser certains calculs beaucoup plus efficacement qu'avec un ordinateur classique. Dans son ensemble, le domaine a réalisé des progrès impressionnants durant les dernières décennies et quelques preuves de principe ont été démontrées (par exemple en cryptographie quantique). Néanmoins la réalisation d'un processeur quantique fonctionnel et utile reste encore clairement un objectif de très long terme. Dans ce contexte, on peut noter la grande diversité de supports de l'information quantique, qui peut être encodée sur des états de charge, de spin, de photon ou de phonon. En parallèle, il existe une grande richesse de systèmes physiques étudiés. Ces derniers sont issus soit de la physique atomique (atomes, ions piégés ou molécules), soit de la matière condensée (circuits supraconducteurs Josephson, impuretés atomiques isolées dans des isolants ou des semiconducteurs, boîtes quantiques semiconductrices).

Dans ce travail de thèse, nous nous focalisons plus particulièrement sur les photons et sur les états quantiques associés [1]. Les photons interagissent peu avec leur environnement, et peuvent se propager avec de faibles pertes sur de longues distances, en espace libre ou guidés par une fibre optique. Ils sont donc un candidat naturel pour les communications quantiques. Ils pourraient également être mis à profit pour connecter des nœuds quantiques localisés et distribuer de l'enchevêtrement au sein d'un réseau quantique. Enfin, ils pourraient aussi être utilisés pour alimenter un circuit photonique pour le calcul quantique photonique. Parmi les états non-classiques de la lumière potentiellement intéressants en information quantique, on peut mentionner les "photons uniques", des impulsions lumineuses contenant un seul photon, les paires de photons enchevêtrés, dont l'un des degrés de liberté (par exemple la polarisation) présente des corrélations d'origine quantique, et enfin les états cluster, qui sont des états à plusieurs photons enchevêtrés.

Les boîtes quantiques (BQ) sont des systèmes de matière condensée qui permettent de générer ces états non-classiques de la lumière à la demande [2]. Une BQ est un îlot semiconducteur de dimensions nanométriques, qui est intégré dans un autre matériau semiconducteur de plus grand gap. Le confinement tridimensionnel des porteurs de charges (électrons et trous) dans l'îlot, à l'échelle de quelques nanomètres, donne naissance à des états électroniques discrets, comme dans un atome. Les BQs sont ainsi souvent qualifiées d'"atomes artificiels". De plus, on s'intéresse ici à des BQs réalisées avec des semiconducteurs à gap direct qui présentent des transitions optiquement actives. En excitant la BQ et en filtrant l'émission associée à la recombinaison d'un exciton (une paire électron-trou piégée dans la BQ), on

réalise une source de photons uniques [3,4]. Dans une boîte idéale, la cascade radiative associée à la recombinaison du bi-exciton (deux paires électron-trou piégées dans la BQ) permet d'émettre des paires de photons enchevêtrés en polarisation [5,6]. Enfin, plus récemment, des états cluster, qui sont des chaînes de photons enchevêtrés ont été émis par une BQ [7].

Il existe deux grandes familles de BQs qui diffèrent par la méthode de synthèse : les BQs colloïdales (aussi appelées nanocristaux) et les BQs épitaxiales. Les BQs colloïdales sont synthétisées par voie chimique. Cette voie de synthèse, peu onéreuse et adaptée à une production de masse, les rend très intéressantes d'un point de vue industriel. Même si plusieurs résultats fondamentaux ont été obtenus avec ces boîtes (comme l'émission de photons uniques [3] ou la réalisation de diodes électroluminescentes quantiques [8]) elles restent surtout intéressantes pour d'autres applications (traceurs lumineux en biologie [9,10], ou pour la réalisation d'écrans comme ceux commercialisés par la société Samsung [11]). Dans ce travail de thèse, nous nous focalisons sur des BQs obtenues par des techniques de croissance épitaxiales. Cette voie de fabrication est plus chère et plus complexe, car elle met en œuvre des techniques d'ultravide et de dépôt de matériaux de haute pureté. Elle est ici privilégiée car les BQs épitaxiales ont d'excellentes propriétés pour l'optique quantique. Plus précisément, nous travaillons avec des BQs réalisées avec des matériaux de la famille III/V (InAs/GaAs). Les boîtes, fabriquées par épitaxie par jets moléculaires, se forment spontanément par un mécanisme d'auto-assemblage, pour abaisser l'énergie de déformation élastique de la couche d'InAs déposée sur le substrat de GaAs.

Les BQs épitaxiales présentent de nombreux atouts pour la génération d'états non-classiques de la lumière. En termes pratiques, il s'agit d'un atome artificiel déjà piégé dans une puce de matériau semiconducteur. Contrairement à un atome réel, il n'est pas nécessaire de développer un dispositif expérimental complexe pour l'isoler et le maintenir dans une position définie. De plus, une BQ offre une émission de lumière stable, sans clignotement ni photo-blanchiment. Le rendement radiatif (probabilité d'émission d'un photon après injection d'une paire électron-trou) est proche de 100 % [12,13]. En outre c'est un émetteur rapide : la recombinaison radiative d'une paire électron-trou s'effectue avec un temps caractéristique de 1 ns. On bénéficie aussi de la technologie des semiconducteurs, notamment du dopage électrique qui permet de réaliser des diodes électroluminescentes quantiques [14]. Enfin, pour un système de matière condensée, l'émission optique est très fine spectralement si on travaille à température cryogénique (hélium liquide, $T = 4$ K) et avec des conditions d'excitation optimisées (excitation résonante) [15–17].

L'utilisation pratique des BQs en optique quantique se heurte toutefois à deux difficultés. Tout d'abord, seule une très faible fraction de la lumière s'échappe de la matrice semiconductrice qui entoure la boîte. Cette matrice présente un très fort indice de réfraction ($n = 3.5$ pour GaAs). En raison d'un phénomène de réflexion totale interne, seuls 2 % de la lumière émise par la BQ parvient à s'échapper. Second point critique : la BQ est un système de matière condensée qui est couplé à plusieurs canaux de décohérence. Ceux-ci sont autant de sources de bruit qui dégradent la pureté spectrale des photons émis, un point important pour la plupart des applications avancées. Par exemple, des fluctuations de charge au voisinage de la boîte vont induire un champ électrique fluctuant. Via l'effet Stark confiné quantique, ce champ fluctuant va induire des fluctuations de l'énergie d'émission [18,19]. La boîte quantique

est également couplée aux vibrations du réseau cristallin via les potentiels de déformation. L'émission de la BQ est ainsi composée d'une raie centrale (dite "à zéro phonon") flanquée de deux "ailes de phonons" qui correspondent à l'émission d'un photon accompagnée de l'émission ou de l'absorption d'un phonon acoustique [20,21]. La raie à zéro phonon est aussi élargie par des transitions virtuelles impliquant des phonons [22,23]. Enfin d'autres canaux de décohérence existent, notamment le bruit induit par les fluctuations des spins nucléaires, qui se couplent au spin des porteurs piégés dans la BQ via l'interaction hyperfine [18].

Beaucoup de stratégies ont été testées pour extraire la lumière émise par la BQ [24]. Une des plus efficace consiste à façonner l'environnement électromagnétique de la BQ pour canaliser son émission vers un mode optique bien défini, qui peut ensuite être collecté efficacement avec des optiques d'espace libre (objectif de microscope). On peut citer ici deux grandes approches : les microcavités optiques et les guides d'ondes [25]. L'approche microcavité optique a été directement inspirée par les succès de la physique atomique. On exploite ici l'interaction résonante entre l'émetteur et un mode optique piégé par la cavité, et les concepts associés d'électrodynamique quantique en cavité. En particulier, dans le régime dit de couplage faible, l'effet Purcell accélère sélectivement l'émission spontanée dans le mode de la cavité. Si cette accélération est suffisamment forte, l'émission spontanée dans le mode de cavité devient le canal d'émission préférentiel. L'effet Purcell a d'abord été mis en évidence sur des cavités de type micropilier [26], mais beaucoup d'autres géométries ont été explorées (microdisques à modes de galerie [27], cavités à cristal photonique [28,29]...). L'accélération de l'émission spontanée associée à l'effet Purcell permet aussi de rendre l'émission de la boîte moins sensible au bruit, et facilite grandement l'émission de photons indiscernables [30–33]. L'autre grande approche exploite des guides d'ondes [13,34,35]. Dans une guide d'onde diélectrique, des dimensions latérales de l'ordre de λ/n (λ la longueur d'onde dans le vide et n l'indice de réfraction) permettent d'optimiser le confinement transverse du mode guidé. On obtient alors un bon couplage au mode guidé, mais en général sans accélération significative de l'émission spontanée. Si on parvient à supprimer le couplage aux autres modes, on peut obtenir une émission spontanée monomode. Par rapport aux microcavités, l'atout principal des guides d'ondes est leur large bande passante. Ceci permet de réaliser des sources accordables en longueur d'onde, ou d'assurer un bon couplage simultanément à des transitions optiques de couleurs différentes.

L'équipe où j'ai réalisé ma thèse développe des antennes à base de guide d'onde depuis une décennie. Ces antennes à fil photonique sont optimisées pour la collection de la lumière en espace libre [36,37]. Le cœur de l'antenne est un guide d'onde cylindrique en diélectrique de fort indice (ici GaAs). Son diamètre est voisin de λ/n , de sorte que seul le mode guidé fondamental est présent. Le fort confinement transverse assure un bon couplage à l'émission de la BQ. De plus, un phénomène d'écrantage diélectrique inhibe l'émission spontanée dans les modes non guidés [13]. En conséquence, l'émission spontanée de la boîte est canalisée très efficacement dans le mode guidé fondamental. Pour optimiser la collection des photons guidés, les deux extrémités du fil sont optimisées. L'antenne repose sur un miroir hybride, composé d'or et d'une fine couche de silice, qui est conçu pour réfléchir le mode guidé fondamental. L'extrémité supérieure du fil est pourvue d'un adaptateur de mode (*taper* en anglais) [38]. Ce dernier permet d'augmenter les dimensions transverses du mode guidé pour obtenir l'émission d'un faisceau directif en champ lointain [39]. Deux types de taper ont été réalisés, en forme

d'aiguille (le diamètre du fil diminue) [40–42] ou de trompette (le diamètre augmente) [43]. Ces antennes émettent un faisceau avec un profil transverse Gaussien [39,43–45]. Ceci permet par exemple un bon couplage à une fibre optique monomode, pour distribuer l'émission de l'antenne sur de longues distances.

En insérant une BQ au sein d'une antenne à fil photonique, on peut réaliser des sources de photons uniques brillantes et pures [40–43]. De plus, la bande passante de l'antenne a permis de réaliser des sources de photons uniques accordables en longueur d'onde [46,47], mais aussi des sources de paires de photons intriquées [48,49], et des sources de triplets de photons corrélés [50]. Au-delà de l'émission d'états quantiques, ces structures photoniques permettent d'exalter des effets optiques non-linéaires : une BQ intégrée dans un fil photonique constitue un "atome unidimensionnel", c'est-à-dire un atome qui interagit avec un unique mode électromagnétique. Ceci permet de générer des non-linéarités géantes, qui apparaissent à l'échelle du photon unique [51]. Une antenne à fil photonique a été également mise à profit pour augmenter par plusieurs ordres de grandeurs le signal de mélange à quatre ondes mesuré sur une boîte unique [52].

Dans une antenne à fil photonique, le temps de recombinaison radiative de l'exciton est voisin de celui d'une BQ dans du semiconducteur massif (1 ns). Cette relative lenteur rend la boîte sensible aux diverses sources de bruit. A basse température ($T = 4$ K) et sous excitation résonnante la largeur spectrale de l'émission excitonique est comprise entre 5 et 10 μeV pour les meilleures BQs [51,53] (mesures indépendantes dans le groupe de R. Warburton (Bâle, Suisse) et dans le groupe de Jean-Philippe Poizat (Institut Néel, Grenoble)). Cette largeur est donc 10 fois supérieure à la limite radiative (légèrement inférieure à 1 μeV). Dans ces conditions, les photons émis par l'antenne sont discernables. Les sources de bruit responsables de cet élargissement spectral peuvent être les sources classiques mentionnées plus haut (charges, phonons) mais aussi des sources de bruit spécifiques à la géométrie nanofil. On pense bien-sûr à la proximité des surfaces gravées, susceptibles d'abriter des états plus ou moins contrôlés. L'équipe a également montré que même à température cryogénique, les vibrations thermiques du nanofil provoquent un élargissement spectral significatif [53,54]. Dans ces deux derniers cas, la position latérale de la BQ au sein de l'antenne influence le couplage au bruit. Un enjeu important est de comprendre les sources de décohérence, pour améliorer les propriétés spectrales des photons émis par une antenne à fil photonique.

Dans ce contexte, ce travail de thèse contribue aux développements actuels des antennes à nanofil à travers deux résultats principaux :

- Nous démontrons une technique de localisation tout-optique (et donc non destructive) qui permet de localiser précisément une BQ dans la section du nanofil. La technique proposée exploite l'émission de la BQ dans deux modes guidés qui présentent des profils spatiaux différents. L'émission simultanée dans ces deux modes donne naissance à une figure d'interférence qui encode la position transverse de l'émetteur. On retrouve cette figure d'interférence dans la carte du champ lointain émis par l'antenne. En mesurant ce dernier en microscopie de Fourier résolue spectralement, on remonte à la position de la boîte. Cette technique est un outil précieux pour comprendre les performances des antennes à fil photonique et guider leur optimisation future. L'article correspondant a été publié dans la revue

Nano Letters [55].

- Nous démontrons une méthode qui permet de sonder les processus de spin-flip entre les différents états excitoniques d'une BQ neutre. Pour révéler ces spin-flips, nous intégrons l'émetteur dans une structure photonique anisotrope (ici un fil photonique avec une section elliptique) qui crée un déséquilibre entre les taux de recombinaison radiatifs des deux excitons brillants. Les spin-flips mélangent les populations des différents niveaux et influencent donc le degré de polarisation linéaire de l'émission excitonique. La mesure de cette quantité sous excitation continue permet de déterminer le taux de spin-flip, sur une large gamme de puissance d'excitation. Des expériences complémentaires de déclin de la photoluminescence résolues en temps permettent de séparer les contributions des spin-flip directs (entre excitons brillants) et indirects (via un état excitonique noir). Nous présentons une étude de l'influence de la température et de la puissance d'excitation non-résonante. L'article correspondant est soumis à Phys. Rev. B.

J'ai également contribué à des mesures sur des antennes à fil photonique dopées et contactées électriquement. Ce système possède plusieurs avantages. L'injection des porteurs dans la BQ par une impulsion électrique est préférable en pratique pour pouvoir utiliser des sources de photons uniques dans des protocoles de cryptographie quantique ou comme source de flux lumineux calibrée dans le domaine de la métrologie. L'application d'un champ électrique (en polarisation inverse) couplée à une excitation laser classique permettrait également de stabiliser l'environnement électrostatique de la BQ réduisant alors l'élargissement spectral induit par des porteurs libres autour de la BQ [56]. Durant ma thèse j'ai pu étudier une première génération de trompette photonique contactée électriquement et nous sommes parvenu à observer la première électroluminescence de BQs intégrées à des fils photoniques. Cependant, cette source était peu brillante du fait d'un défaut de fabrication. Ces résultats, prometteurs mais encore préliminaires, ne sont pas discutés dans ce manuscrit.

Mon travail de thèse est à dominante expérimentale. J'ai notamment mis en œuvre de nombreuses techniques de spectroscopie optique sur BQ unique : micro-photoluminescence à température cryogénique, microscopie de Fourier, déclin de la photoluminescence résolu en temps, analyse en polarisation. Ma thèse s'est également déroulée dans un contexte particulier : une très longue panne (un an et demi) de la machine de croissance MBE a empêché la réalisation de nouveaux échantillons. Tous les résultats présentés dans ce manuscrit ont été obtenus sur une structure âgée de plus de 10 ans : l'antenne à nanofil avec un taper en aiguille présentée dans les Refs. [40] et [37].

Le manuscrit est organisé de la manière suivante :

- Le Chapitre I est une introduction scindée en deux grandes parties. La première décrit les propriétés électroniques et optiques des boîtes quantiques auto-assemblées. La seconde discute le contrôle de l'émission spontanée offert par deux grandes classes de structures photoniques : les microcavités et les guides d'ondes.

- Le Chapitre II décrit en détail les propriétés optiques des antennes à fils photoniques. Il débute en examinant les mécanismes à l'œuvre dans le contrôle de l'émission spontanée offert

par un fil photonique. Nous abordons ensuite le fonctionnement d'une antenne complète, et décrivons le procédé de fabrication des structures étudiées durant la thèse.

- Le Chapitre III présente la technique de localisation tout optique décrite plus haut (résultat 1). Après quelques pages d'introduction, nous reproduisons l'article associé à ces résultats.

- Le Chapitre IV présente la méthode d'étude des phénomènes de spin-flip entre les états excitoniques supportés par une BQ neutre (résultat 2). Il présente le cadre théorique nécessaire pour interpréter les mesures de polarisation et les mesures de temps de vie, avant de discuter les résultats expérimentaux.

- Le dernier Chapitre est dédié aux remarques de conclusion et aux perspectives ouvertes par ces travaux.

Chapitre I

Boîtes quantiques auto-assemblées et structures photoniques

Contents

1	Propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs	10
1.1	Morphologie et synthèse des boîtes quantiques	10
1.1.1	Croissance des boîtes quantiques	10
1.1.2	Propriétés morphologiques	12
1.2	États électroniques	12
1.2.1	Structure de bandes des matériaux III-V	12
1.2.2	États électroniques de la couche de mouillage	16
1.2.3	États électroniques des boîtes quantiques InAs/GaAs	17
1.3	Propriétés optiques d'une boîte quantique	19
1.3.1	Représentation des états de paire électron-trou	19
1.3.2	Règles de sélection optique et absorption	20
1.3.3	Absorption optique du système boîte quantique - couche de mouillage	21
1.3.4	Excitation non résonante de la photoluminescence	22
1.4	Structure fine des différents complexes excitoniques	24
1.4.1	Structure fine de l'exciton neutre	24
1.4.2	Structure fine de l'émission du bi-exciton neutre	26
1.4.3	Structure fine des trions positifs et négatifs	27
1.5	Conclusion intermédiaire	28
2	Structures photoniques pour le contrôle de l'émission spontanée	29
2.1	Règle d'or de Fermi - Taux d'émission spontanée	29
2.2	Émission spontanée dans un matériau massif	31
2.3	Microcavités optiques	32
2.3.1	Taux d'émission dans un mode de cavité	32
2.3.2	Quelques exemples de cavités optiques	33
2.3.3	Avantages et limites des micro-cavités optiques	35
2.4	Guides d'ondes	36

CHAPITRE I. BOÎTES QUANTIQUES AUTO-ASSEMBLÉES ET STRUCTURES PHOTONIQUES

2.4.1	Taux d'émission dans un mode guidé	37
2.4.2	Quelques exemples de guides d'ondes à fort β	38
2.5	Conclusion	41

Le but de ce chapitre est de poser les briques essentielles pour comprendre les études et les résultats des chapitres suivants. Ce travail de thèse porte sur l'étude de sources de photons uniques à nanofils photoniques, composant capable d'émettre à la demande des impulsions lumineuses contenant un seul photon. Un tel composant est au centre de nombreuses recherches depuis une vingtaine d'années, tant par son intérêt fondamental que par des perspectives d'applications dans les domaines de la métrologie ou les communications quantiques. Nous rappellerons dans un premier temps les principales propriétés de notre émetteur de photons : la boîte quantique. Nous verrons que ces nanostructures semiconductrices se comportent comme des atomes artificiels. La collection des photons émis par cet émetteur est un défi car la boîte quantique est entourée par un matériau massif à fort indice de réfraction. Nous verrons alors dans un second temps comment structurer l'environnement photonique autour de la boîte pour parvenir à contrôler son émission spontanée et la collecter efficacement. Cette section présentera deux grandes familles de structures photoniques : les micro-cavités et les guides d'ondes.

1 Propriétés optiques des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs

Ce travail de thèse a porté sur l'étude de boîtes quantiques d'Arséniure d'Indium (InAs) intégrées dans une matrice d'Arséniure de Gallium (GaAs). Ces deux matériaux sont des semi-conducteurs III-V (Ga et In sont des éléments de la troisième colonne du tableau périodique de Mendeleïev, As fait partie de la cinquième colonne). Ces semi-conducteurs ont généralement une faible largeur de bande interdite et sont souvent à gap direct ce qui permet des transitions optiques efficaces. Pour ces raisons ces matériaux sont très utilisés dans le domaine de l'opto-électronique. Le tableau I.1 donne les principales caractéristiques des semi-conducteurs InAs et GaAs.

Caractéristiques	InAs	GaAs
structure cristalline	Zinc blende	Zinc blende
gap	direct	direct
paramètre de maille à 300K (Å)	6.0584	5.6533
gap E_g à 300K (eV)	0.36	1.42
gap E_g à 4K (eV)	0.42	1.52

Table I.1 – Principales caractéristiques des semi-conducteurs InAs et GaAs. Les données de ce tableau sont issu de [57].

Nous allons maintenant aborder la réalisation des boîtes quantiques et leur morphologie, puis nous nous intéresserons à la structure des états électroniques pour enfin présenter leurs principales propriétés optiques.

1.1 Morphologie et synthèse des boîtes quantiques

1.1.1 Croissance des boîtes quantiques

Il existe plusieurs types de boîtes quantiques permettant d'obtenir des caractéristiques assez variées. Les plus étudiées et utilisées appartiennent à deux catégories : les boîtes quantiques colloïdales (ou nanocristaux colloïdaux) synthétisées par voie chimique et les boîtes quantiques épitaxiées. Les nanocristaux sont des sphères cristallines de quelques nanomètres, le plus souvent protégés par une coquille (systèmes cœur-coquille). Ces systèmes possèdent de nombreux avantages. La synthèse chimique est rapide et peu onéreuse. De plus la taille des nanocristaux est finement contrôlée. Selon la synthèse chimique appliquée, les nanocristaux ont un diamètre entre 2 et 10 nm avec une dispersion inférieure à 5% [58] ce qui permet un contrôle fin de la longueur d'onde d'émission. Ils sont très largement utilisés comme marqueurs fluorescents en biologie [9,10] ou pour la conversion en longueur d'onde dans les LEDs et les lasers [59]. Ce travail de thèse porte sur la deuxième catégorie de boîtes : les boîtes quantiques épitaxiées.

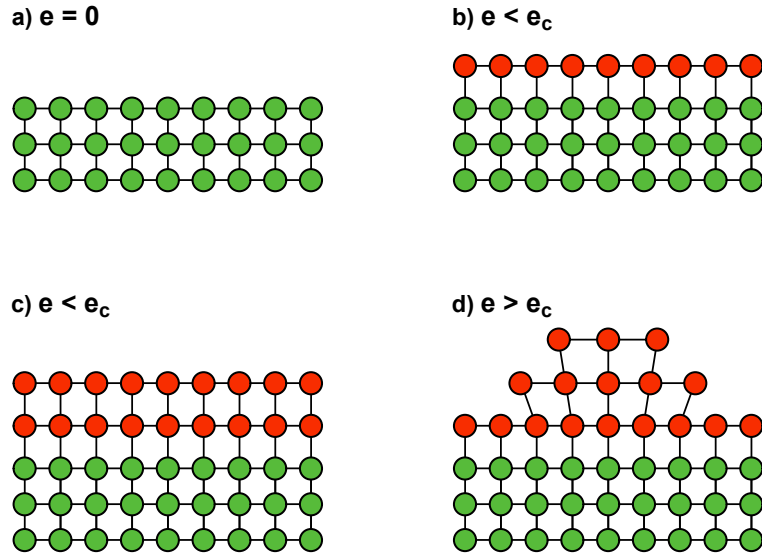


Fig. I.1 – Représentation schématique de la croissance de type Stranski-Krastanov. Les “billes” vertes représentent le GaAs et les rouges l’InAs. a), b) et c) Les premières couches d’InAs forment une couche cohérente et planaire sur le substrat GaAs. d) Lorsque que l’épaisseur de cette couche e dépasse l’épaisseur critique e_c des îlots apparaissent dûs à une relaxation élastique et reposent sur la couche résiduelle d’InAs dite couche de mouillage.

La méthode la plus répandue pour obtenir des boîtes quantiques auto-assemblées est celle dite de Stranski-Krastanov. Cette méthode a été découverte accidentellement dans le groupe de J. Y. Marzin en 1985 [60]. Elle exploite un mode de croissance particulier des couches minces théorisée par I. Stranski et L. Krastanov en 1938. Dans le cas des boîtes InAs/GaAs, le principe est de faire croître l’InAs sur un cristal monocristallin et planaire de GaAs. Cette croissance est faite par une épitaxie à jets moléculaire (MBE pour Molecular Beam Epitaxy en anglais). Un substrat planaire de GaAs est placé dans la chambre d’épitaxie sous une très faible pression (de l’ordre de 10^{-12} mbar). Les matériaux à croître (ici Ga, As et In) sont évaporés via des cellules d’effusion et sont envoyés par jets moléculaires sur le substrat. Pour pouvoir obtenir des boîtes quantiques, il est crucial que le matériau composant la boîtes quantique ait un paramètre de maille légèrement supérieur à celui du matériau composant le substrat (un peu moins de 7% de différence entre InAs et GaAs cf tableau I.1). La couche d’InAs s’adapte dans un premier temps au substrat, constituant une couche cohérente et planaire sur le GaAs. Au-delà d’une épaisseur critique de 1.7 monocouches d’InAs, les contraintes dues au désaccord de maille relaxent élastiquement par une transition structurale. Des îlots apparaissent sur une couche 2D résiduelle que l’on appelle couche de mouillage (ou WL pour wetting layer en anglais). La figure I.1 schématise ce processus de croissance. Une fois les îlots formés, ils sont recouverts par du GaAs, ce qui permet d’obtenir des structures optiquement actives. Cette étape d’encapsulation modifie la morphologie et la composition des îlots du fait de la diffusion du GaAs dans l’InAs.

1.1.2 Propriétés morphologiques

La figure (I.2) illustre la morphologie des boîtes quantiques InAs/GaAs. On peut y voir une image d'une coupe transverse réalisée au Microscope Électronique à Transmission (TEM pour Transmission Electronic Microscopy en anglais). Les boîtes quantiques auto-assemblées ont généralement une forme de lentille aplatie de 10 à 20nm de diamètre et 1 à 5nm de hauteur. Leurs dimensions dépendent des paramètres de croissance. Outre une localisation aléatoire dans le plan de croissance, il existe une dispersion dans la taille, la forme et la composition des boîtes quantiques pour une même croissance. Toutefois cette dispersion peut être plus ou moins réduite en effectuant un recuit de l'échantillon [61]. La couche de mouillage sur laquelle repose les boîtes quantiques est une couche 2D très rugueuse, constituée de une à plusieurs monocouches atomiques (1 nm en moyenne).

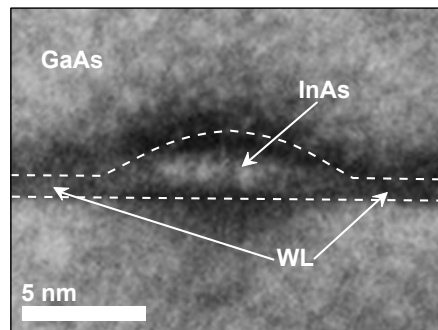


Fig. I.2 – Boîte quantique auto-assemblée InAs/GaAs. Vue transverse d'une BQ InAs au sein d'une matrice GaAs réalisée au microscope électronique en transmission (TEM). On peut observer l'îlot d'InAs (la BQ) et une fine couche 2D d'InAs autour de la BQ que l'on appelle couche de mouillage (WL pour Wetting Layer en anglais). Ces éléments sont délimités par les traits blancs en pointillés. Image obtenue par A. Ponchet (CNRS/CEMES) Toulouse, sur un échantillon fabriqué par J.M. Gérard (France télécom/CNET, 1993)

1.2 États électroniques

1.2.1 Structure de bandes des matériaux III-V

Comme nous l'avons évoqué en début de chapitre, le GaAs et l'InAs sont des semiconducteurs III-V à gap direct cristallisant selon la structure Zinc-blende. Chaque maille élémentaire est alors constituée de deux atomes avec 8 électrons de valence. Au sein d'un cristal massif doté d'un grand nombre de mailles élémentaires, les orbitales de valence se combinent pour former un ensemble de bandes d'énergie. Le maximum de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction se trouvent au même point Γ dans l'espace des \vec{k} . Pour étudier les propriétés optiques de ces semiconducteurs il suffit de connaître la structure de bande au voisinage de ce point. Nous allons rapidement voir comment s'obtient cette description.

L'hamiltonien qui permet de rigoureusement décrire un solide s'écrit :

$$H = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + \sum_i \frac{P_i^2}{2M_j} + \frac{1}{2} \sum_{j,j'} \frac{Z_j Z_{j'} e^2}{|\vec{R}_{j'} - \vec{R}_j|} + \frac{1}{2} \sum_{i,i'} \frac{e^2}{|\vec{r}_{j'} - \vec{r}_j|} - \sum_{i,j} \frac{Z_j e^2}{|\vec{r}_i - \vec{R}_j|}, \quad (\text{I.1})$$

où m_i , \vec{r}_i et \vec{p}_i et M_j , \vec{R}_j et \vec{P}_j sont respectivement les masses, positions et les quantités de mouvement de l'électron i et du noyau j . Z_j est la charge du noyau j et e la charge élémentaire de l'électron. Les deux premiers termes prennent en compte les énergies cinétiques des électrons et noyaux du système. Les trois derniers correspondent aux interactions coulombienne noyau-noyau, électron-électron et noyau-électron. La résolution de l'équation de Schrödinger avec cet hamiltonien n'est pas envisageable car trop complexe. Néanmoins, cette résolution devient possible au prix de quelques approximations. On peut tout d'abord considérer que les électrons voient un réseau cristallin immobile (approximation de Born-Oppenheimer). En d'autres termes on considère que les noyaux sont immobiles. La seconde approximation (celle de Hartree-Fock) consiste à considérer que chaque électron est soumis à un potentiel moyen $V(\vec{r})$. Ce potentiel tient compte du champ attractif des noyaux du réseau cristallin et du champ répulsif des autres électrons. Les fonctions d'onde Ψ des états à un électron vérifient alors :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \right) \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}). \quad (\text{I.2})$$

Le potentiel $V(\vec{r})$ possède les mêmes symétries que celle du réseau cristallin. Le théorème de Bloch stipule que les solutions de l'équation I.2 sont décrites dans la base des fonctions de Bloch $\psi_{j,\vec{k}}(\vec{r})$:

$$\psi_{j,\vec{k}}(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} u_{j,\vec{k}}(\vec{r}), \quad (\text{I.3})$$

où j est l'indice de la bande et \vec{k} le vecteur d'onde. Le premier terme d'onde plane caractérise l'invariance par translation dans le cristal. Le second, souvent appelé "fonction atomique", possède la périodicité du cristal. Le calcul des bandes, c'est-à-dire l'évolution de la dépendance en \vec{k} des énergies propres $E_j(\vec{k})$ associées aux états de Bloch peut alors se faire par plusieurs méthodes. Pour les électrons de cœur qui sont très confinés dans le cristal, la méthode la plus adaptée est celle des liaisons fortes. Les électrons de valence, qui sont susceptibles de jouer un rôle dans les propriétés optiques du matériau, sont quant à eux faiblement confinés. Pour ces électrons les méthodes du pseudopotentiel ou des ondes planes orthogonales [62] permettent une description totale de la structure de bandes. Cependant elles restent très complexes et lourdes à mettre en œuvre. Comme nous nous intéressons au voisinage du point Γ ($\vec{k} = 0$), la méthode $\vec{k} \cdot \vec{p}$ est alors la plus adaptée [63]. Cette méthode consiste à résoudre l'équation I.2 en $\vec{k} = \vec{0}$ et ainsi déterminer $u_{j,\vec{0}}(\vec{r})$ et l'énergie associée $E_{j,\vec{0}}$. Pour $\vec{k} \neq \vec{0}$ au voisinage de $\vec{k} = \vec{0}$ les solutions sont trouvées avec la théorie des perturbations. Nous sommes alors capable de tracer la structure de bandes de ces matériaux (GaAs et InAs pour notre part) au voisinage du point Γ . Le lecteur s'intéressant aux différentes étapes de calcul pourra se référer à [64].

Structure de bandes au voisinage du point Γ . Dans un premier temps, nous ne prenons pas en compte le couplage spin-orbite (interaction entre le spin de l'électron et du champ

magnétique créé par son mouvement). Chaque bande est alors caractérisée par son moment cinétique orbital \vec{L} et par son moment cinétique de spin $\vec{\sigma}$. Au point Γ , les états électroniques seront décrits dans la base d'états propres $\{|L, m_z, \sigma, \sigma_z\rangle\}$. L est le nombre quantique associé aux valeurs propres de L^2 , de la forme $\hbar^2 L(L+1)$. L_z est la projection du moment cinétique selon z avec comme valeurs propres $\hbar m_z$. $\sigma = 1/2$ est le spin de l'électron, et on note $\sigma_z = \pm 1/2$ la projection du spin suivant z . La structure de bande est visible sur la figure I.3 a). La bande de conduction, caractérisée par $L = 0$, est de type S (analogie avec la physique atomique). Elle est dégénérée 2 fois (deux orientations du spin de l'électron possible, $\sigma_z = \pm 1/2$). La bande de valence, pour laquelle $L = 1$, est quant à elle de type P. Elle est dégénérée 3×2 au point Γ (3 bandes 2 fois dégénérées par le spin $\sigma_z = \pm 1/2$). On peut noter que dès qu'on s'éloigne du point Γ , les états électroniques ne sont plus des états propres de L^2 et L_z .

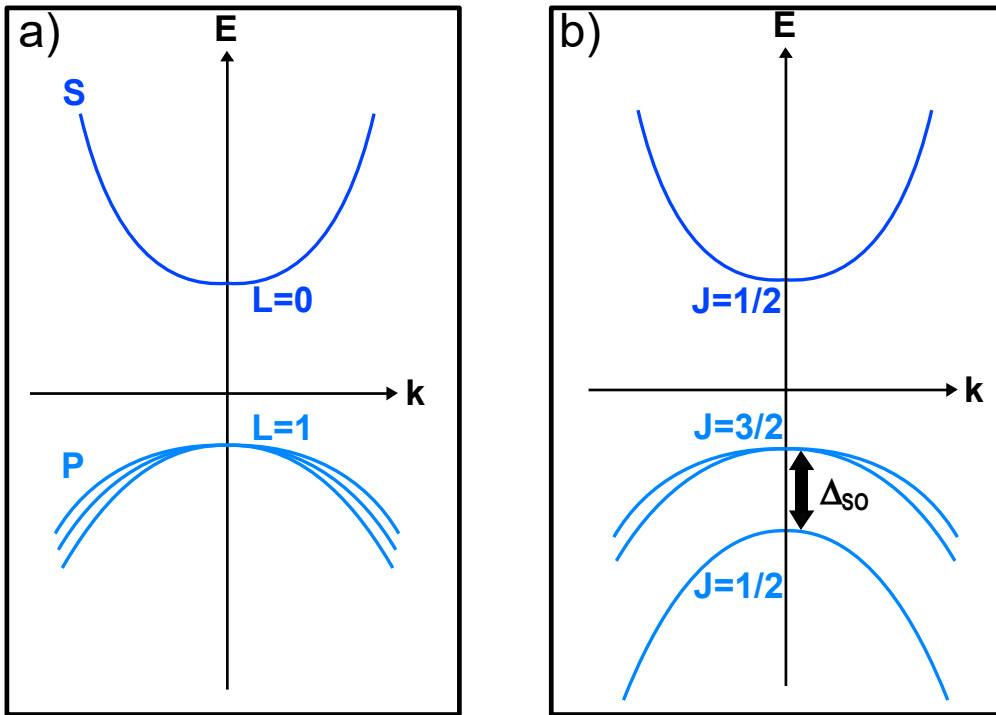


Fig. I.3 – Structure de bandes des semiconducteurs à gap direct au voisinage du point Γ . a) Structure de bandes sans tenir compte du couplage spin-orbite. La bande de conduction de type S est caractérisée par son moment cinétique orbital $L = 0$. La bande de valence de type P possède trois bandes de moment $L = 1$. b) Structure de bandes tenant compte d'un fort couplage spin-orbite. Ce dernier conduit à une levée de dégénérescence partielle de la bande de valence. On note Δ_{SO} l'écart en énergie des bandes $J = 3/2$ et $J = 1/2$ induit par le couplage spin-orbite (J est le moment cinétique angulaire total).

Effet du couplage spin-orbite. En réalité il est important de prendre en compte le couplage spin-orbite. L'équation I.2 doit être réécrite tel que :

$$\left(\frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) + H_{SO} \right) \Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) , \quad (\text{I.4})$$

où H_{SO} est l'hamiltonien d'interaction spin-orbite qui est proportionnelle à $\vec{L} \cdot \vec{\sigma}$. Dans les matériaux III-V le couplage spin-orbite est important [62]. Cet ajout de change pas la forme générale des solutions mais a pour effet de lever partiellement la dégénérescence des bandes de valence. Il est alors commode de caractériser les états électroniques du semiconducteur massif au point Γ par le moment cinétique angulaire total $\vec{J} = \vec{\sigma} + \vec{L}$. Les états électroniques seront alors décrits dans la base d'états propres $\{|J, j_z\rangle\}$ associés aux opérateurs J^2 et J_z . J^2 est le carré de la norme de \vec{J} , et ses valeurs propres sont de la forme $\hbar^2 J(J+1)$. J_z est la projection de \vec{J} sur l'axe z dont les valeurs propres sont $\hbar j_z$. Les deux bandes de conduction $|J = 1/2, j_z = \pm 1/2\rangle$ ne sont pas modifiées par le couplage spin-orbite puisque leur moment cinétique orbital est nul ($L = 0$). Cependant ce couplage a pour effet de lever la dégénérescence des bandes de valence. Il apparaît alors un quadruplet caractérisé par $J = 3/2$ composé de deux bandes appelées bande des trous légers $|J = 3/2, j_z = \pm 1/2\rangle$ et bande des trous lourds $|J = 3/2, j_z = \pm 3/2\rangle$ et un doublet caractérisé par $J = 1/2$, $|J = 1/2, j_z = \pm 1/2\rangle$. Le couplage spin-orbit a pour effet de décaler ce dernier doublet à des énergies plus faibles. L'écart en énergie se note Δ_{SO} et vaut pour GaAs 340 meV [62]. Ce doublet se retrouve assez bas en énergie pour ne plus le prendre en compte (les électrons de cette bande sont donc assimilés à des électrons de cœur). La figure I.3 b) illustre l'effet du couplage spin-orbite sur les bandes de valence.

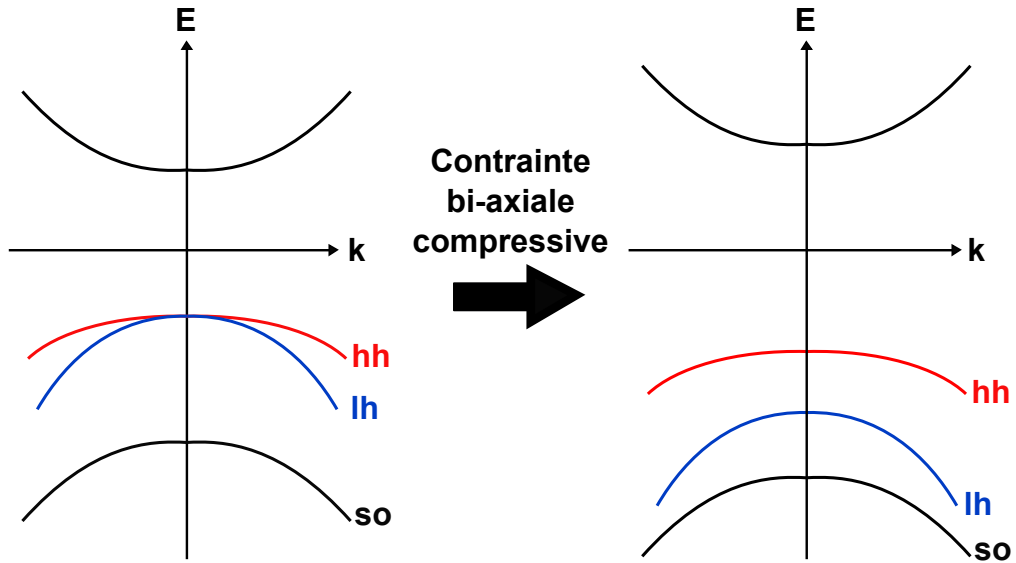


Fig. I.4 – Effet de la contrainte sur les semiconducteurs III-V à gap direct au voisinage du point Γ . En rouge la bande dite des trous lourds (hh pour heavy hole en anglais), en bleu celle des trous légers (lh pour light hole en anglais) et en noire celle du couplage spin-orbite (so) (voir figure I.3). Une contrainte biaxiale compressive lève la dégénérescence des bandes hh et lh au point Γ et induit également une augmentation du gap E_g .

Effets de la contrainte mécanique. Comme on l'a vu au paragraphe 1.1 les boîtes quantiques InAs sont entourées d'une matrice de GaAs (cf I.2). Cette matrice a pour effet d'appliquer une contrainte compressive et bi-axiale sur la couche de mouillage et au sein des boîtes. Ces contraintes lèvent la dégénérescence entre la bande des trous légers (notées lh) et celle des trous lourds (notées hh) au point Γ ($\vec{k} = \vec{0}$). La figure I.4 illustre cet effet.

La bande des trous légers est décalée vers des énergies plus basses (de l'ordre de plusieurs dizaine de meV [65]), assez loin pour ne considérer que la bande des trous lourds pour les états de valence du système. La nature de la levée de dégénérescence des états lourds et légers dépend fortement de la géométrie des systèmes considérés et des matériaux en jeu. Il existe des configurations pour lesquelles l'effet montré plus haut est inversé (décalage à plus haute énergie des trous légers). On pourra se référer à [66] pour une discussion plus approfondie.

1.2.2 États électroniques de la couche de mouillage

Comme nous l'avons évoqué précédemment, la couche de mouillage est une couche d'InAs sur laquelle reposent les boîtes quantiques (figure I.2). Cette couche est rugueuse, cependant nous pouvons considérer en première approximation qu'elle est parfaitement lisse. Cette couche est un puits quantique : les porteurs sont confinés dans une seule direction de l'espace (ici z) et libres de se déplacer dans le plan (x, y) . Le calcul des niveaux d'énergies accessibles aux électrons et aux trous au sein du puits peut être effectué dans le formalisme des fonctions enveloppes [64]. Comme dans le paragraphe 1.2.1 les fonctions d'onde des porteurs peuvent être décrites par des fonctions de Bloch :

$$\Psi_{j, \vec{k}}(\vec{r}') = \phi_{n,j}(\vec{r}') u_{j, \vec{k}}(\vec{r}') . \quad (\text{I.5})$$

Cependant la partie d'onde plane en $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}'}$ qui traduisait l'invariance par translation dans le cristal massif (cf I.3) devient une fonction $\phi_{n,j}$ qui varie lentement à l'échelle des mailles cristallographiques et qui provient du confinement des porteurs dans la nanostructure. C'est la fonction enveloppe, qui peut se mettre ici sous la forme :

$$\phi_{n,j} = e^{i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}'_{\parallel}} \Phi_{n,j}(z) , \quad (\text{I.6})$$

où \vec{k}_{\parallel} et \vec{r}'_{\parallel} sont respectivement le vecteur d'onde et le vecteur position dans le plan (x, y) . Le premier facteur $e^{i\vec{k}_{\parallel} \cdot \vec{r}'_{\parallel}}$ est la partie onde plane de l'état délocalisé dans le plan (x, y) et le second facteur $\Phi_{n,j}(z)$ correspond à un état localisé dans la direction z . n est l'indice de l'état localisé selon z et j est l'indice de la bande étudiée. Chaque bande j possède un ensemble de niveaux d'énergies $E_{n,j}$, ces niveaux se comportant comme un continuum 2D. La densité d'état correspondante présente donc un profil en marche d'escalier [67]. Dans le cas des boîtes quantiques InAs/GaAs, le fort confinement en z et la présence de contrainte bi-axiale (voir section précédente) permet de ne considérer que les états de trous lourds pour la bande de valence. De plus, seul le premier état $n = 1$ est confiné. La densité d'état présente donc une seule marche.

En réalité la couche de mouillage n'est pas parfaitement lisse. Elle est composée de "marches" d'une à deux couches atomiques [68] avec une valeur moyenne de 1.7 monocouches (MC) au début de la nucléation des boîtes quantiques [69]. Ces défauts se comportent comme des boîtes quantiques très aplaties. Pour une bande j donnée de la couche de mouillage il faut alors remplacer le quasi-continuum 2D par une distribution d'états plus ou moins localisés. Cela a pour effet d'adoucir le profil abrupt de la densité d'états comme illustré sur la figure I.5.

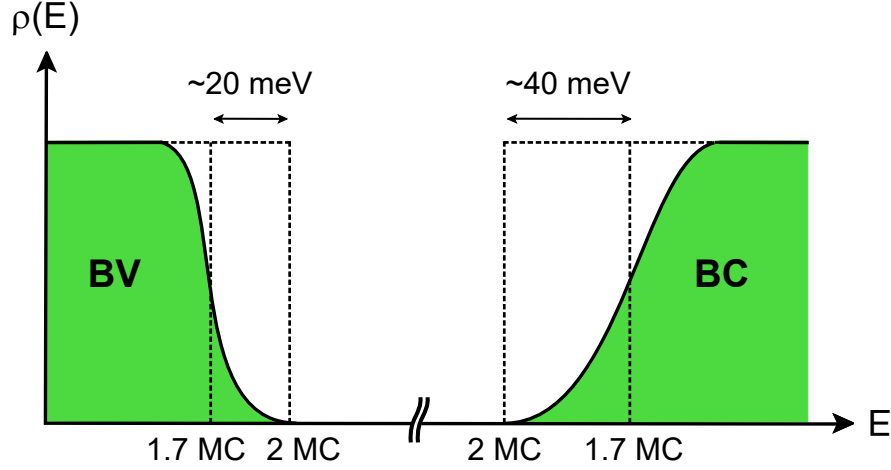


Fig. I.5 – Densité d'états de la couche de mouillage. La rugosité de la couche de mouillage se traduit par des queues de densité d'états. En pointillés sont représentées les densités d'états de puits quantiques parfaits, d'épaisseur 1.7 MC et 2 MC. Les valeurs sont issues de [65]. Cette figure est adaptée de [70].

1.2.3 États électroniques des boîtes quantiques InAs/GaAs

Comme nous l'avons évoqué au début de ce chapitre une boîte quantique est une nanostructure qui confine les porteurs dans les trois directions de l'espace, ce qui conduit à une discrétisation des niveaux d'énergies accessibles. Les boîtes quantiques InAs/GaAs auto-assemblées ont généralement une forme de lentille aplatie dans la direction de croissance z (direction [001] du cristal). De plus, elles présentent souvent une ellipticité dans le plan de croissance [71]. En règle générale cette anisotropie est orientée suivant les axes cristallographiques [110] et [110] [72] mais il est possible de rencontrer des déviations par rapport à ces axes. Le potentiel de confinement associé à une description réaliste de la boîte est complexe (non séparable, sans symétries), ce qui rend impossible une résolution analytique. Pour mieux comprendre les phénomènes physiques en jeu, nous décrivons, dans une première approche, la boîte quantique comme un cylindre aplati. Nous verrons plus tard que la brisure de la symétrie de révolution a un impact sur la structure fine du premier niveau excité de la boîte (section 1.4). Dans cette géométrie simplifiée, le potentiel de confinement V_c , prenant en compte l'anisotropie de confinement entre la direction z et le plan (x, y) et les contraintes compressives, a également une symétrie cylindrique d'axe z . Pour rappel, les niveaux discrets de la boîte quantique proviennent de la bande de valence (doublet $|J = 3/2, j_z = \pm 3/2\rangle$ des trous lourds) et de la bande de conduction (doublet $|J = 1/2, j_z = \pm 1/2\rangle$). Comme pour le cas de la couche de mouillage, le calcul des niveaux d'énergies accessibles aux électrons et aux trous au sein de la boîte quantique peut être effectué dans le formalisme des fonctions enveloppes. La fonction d'onde associée à la bande j s'écrit :

$$\Psi_{j, \vec{k}}(\vec{r}) = \phi_{n,j}(\vec{r}) u_{j, \vec{k}}(\vec{r}). \quad (\text{I.7})$$

La fonction enveloppe $\phi_{n,j}$ se factorise en deux parties. La première décrit le confinement vertical (selon z). Comme dans le cas de la couche de mouillage, seul le premier état $n = 1$ est confiné (cet indice sera omis dans la suite pour simplifier). La seconde partie décrit le confinement dans le plan transverse, et présente une symétrie cylindrique. On décrit cette partie transverse dans la base des états propres enveloppes $\{|L, m_z\rangle\}$ qui sont associés aux

opérateurs L^2 et L_z . Les énergies E_{L,m_z} de chaque état sont calculées en résolvant l'équation de Schrödinger adaptée à notre système (utilisation de l'approximation de masse effective à une bande).

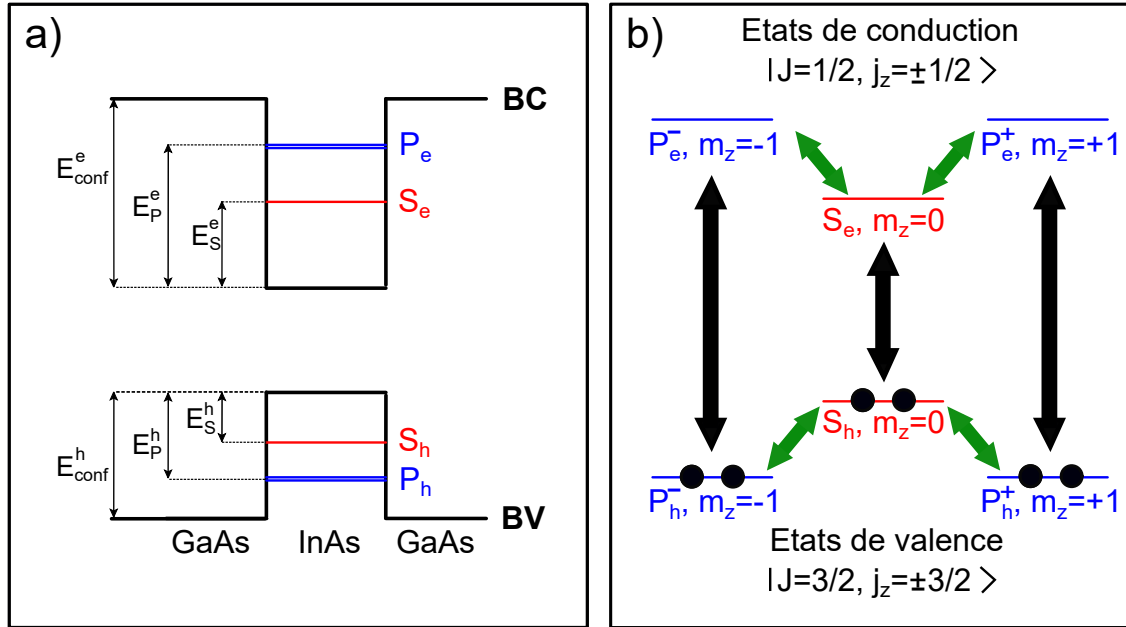


Fig. I.6 – Schéma de niveaux dans une boîte quantique. a) Schéma simplifié des niveaux d'énergie au sein d'une boîte InAs/GaAs. Seuls les états S et P sont confinés dans le puits de potentiel créé par la boîte. b) État fondamental de la boîte quantique. Les ronds noirs représentent les électrons. La bande de valence est entièrement remplie. Les flèches noires (respectivement vertes) représentent les transitions interbandes (respectivement intrabandes) admises entre les différents états enveloppes.

Cependant seul un nombre fini d'états peuvent être confinés au sein de la boîte InAs du fait de la valeur finie de la barrière de potentiel vue par l'îlot InAs dans la matrice GaAs. Pour des boîtes InAs/GaAs auto-assemblées assez petites (émettant à une longueur d'onde inférieure à $1 \mu\text{m}$) seuls les états qui ont une fonction enveloppe associée à $L = 0$ (état S toujours par analogie avec la physique atomique) et $L = 1$ (noté P via la même analogie) respectent cette condition. Pour des boîtes plus grosses et émettant autour de $1.3 \mu\text{m}$ il faut aussi considérer les états D ($L = 2$). On note S_e et P_e (respectivement S_h et P_h) les états confinés dans la bande de conduction (respectivement dans la bande de valence). La figure I.6 a) illustre cet effet de confinement sur les niveaux accessibles pour les porteurs au sein de la boîte. La figure I.6 b) représente l'état fondamental de la boîte où la bande de valence est entièrement remplie et la bande de conduction entièrement vide (dans une représentation purement électronique).

Nous pouvons décrire le système entier InAs/GaAs selon un diagramme densité-énergie. Ce diagramme est schématisé sur la figure I.7. Les valeurs affichées sur la figure sont des valeurs moyennes à température cryogénique ($T = 4 \text{ K}$). Elles dépendent de la croissance et de la morphologie des BQs.

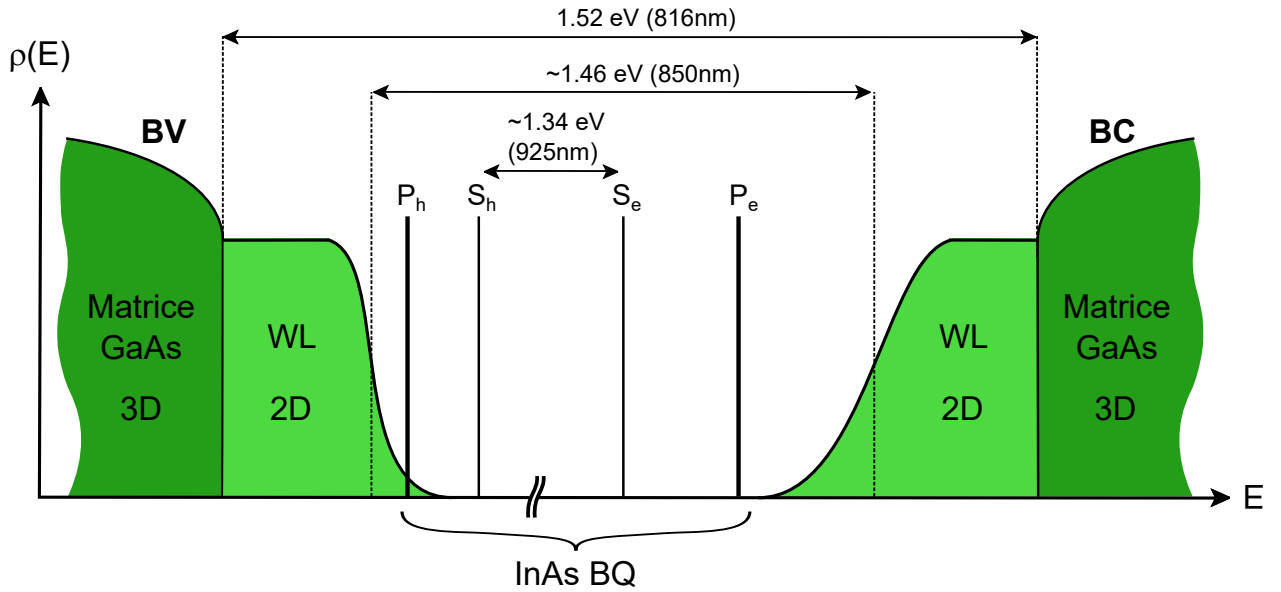


Fig. I.7 – Densité d’états d’une boîte quantique auto-assemblée InAs/GaAs. Ce diagramme n’est pas issu d’un calcul rigoureux, il ne représente que schématiquement les niveaux d’énergie accessibles aux électrons et aux trous. Les valeurs de gap sont des valeurs moyennes pour $T = 4$ K. Elles dépendent des paramètres de croissance.

1.3 Propriétés optiques d’une boîte quantique

Dans cette section, nous allons décrire les propriétés optiques d’une boîte quantique, et préciser dans quelle mesure celles-ci confèrent à ces émetteurs des propriétés similaires à celles d’un atome. Nous nous intéressons ici surtout aux transitions interbandes (entre la bande de valence et celle de conduction).

1.3.1 Représentation des états de paire électron-trou

Lorsque la boîte est dans son état fondamental, tous les électrons occupent les états de valence, laissant entièrement vide les états de conduction. On notera par la suite cette configuration $|g\rangle$ (g pour ground state en anglais). Lors d’une excitation interbande élémentaire, un électron des états de valence est promu vers un état de conduction. Cette transition laisse donc une place vacante dans les états de valence de la boîte. Posons N le nombre total d’électrons du système. Pour caractériser une excitation élémentaire, il faut décrire l’état de conduction d’un électron et les états de valence des $N - 1$ électrons restants. En physique du solide, ces électrons “absents” de la bande de valence sont décrits par une particule fictive : le trou. Ces quasi-particules possèdent les mêmes caractéristiques que les électrons mais toutes de signes opposées. Le mécanisme d’émission spontanée fait intervenir la recombinaison radiative d’un électron se trouvant sur un état de conduction avec un trou des états de valence. La description à un corps (soit un électron, soit un trou pris séparément) n’est donc plus adaptée. Il faut alors considérer une représentation à deux corps des états de paire électron-trou confinés dans la boîte quantique. Dans cette paire, l’électron est sur un état de conduction et le trou sur un état de valence. Comme nous l’avons vu dans la section 1.2 les

électrons des états de conduction seront notés dans la suite de chapitre tel que :

$$|e \uparrow\rangle = \left| J = \frac{1}{2}, j_z = +\frac{1}{2} \right\rangle \quad (\text{I.8})$$

$$|e \downarrow\rangle = \left| J = \frac{1}{2}, j_z = -\frac{1}{2} \right\rangle . \quad (\text{I.9})$$

De même les trous des états de valence des trous lourds seront notés :

$$|hh \uparrow\rangle = \left| J = \frac{3}{2}, j_z^h = +\frac{3}{2} \right\rangle \quad (\text{I.10})$$

$$|hh \downarrow\rangle = \left| J = \frac{3}{2}, j_z^h = -\frac{3}{2} \right\rangle . \quad (\text{I.11})$$

1.3.2 Règles de sélection optique et absorption

Pour décrire la création optique d'une paire électron-trou, il faut donc s'intéresser aux probabilités qu'un électron initialement dans un état de valence $|\Psi_i\rangle$ passe dans un état de conduction $|\Psi_f\rangle$ en absorbant un photon. L'hamiltonien de couplage entre l'électron et le champ électromagnétique est bien décrit par l'approximation dipolaire (les termes d'ordres supérieurs sont négligés car la boîte est très petite devant la longueur d'onde du rayonnement) :

$$H = -\vec{D} \cdot \vec{E} , \quad (\text{I.12})$$

où \vec{D} est l'opérateur dipôle électronique et \vec{E} est l'opérateur du champ électromagnétique.

Comme nous l'avons fait précédemment (équ. I.7) les états s'écrivent dans le formalisme de la fonction enveloppe par le produit d'une partie enveloppe ϕ et d'une partie atomique u telle que :

$$|\Psi_i\rangle = |u_i\rangle|\phi_i\rangle \quad \text{et} \quad |\Psi_f\rangle = |u_f\rangle|\phi_f\rangle . \quad (\text{I.13})$$

La probabilité de transition dépend alors de l'élément de matrice :

$$\langle \Psi_f | H | \Psi_i \rangle = -\vec{E} \cdot \langle \phi_f | \vec{D} | \phi_i \rangle \cdot \langle u_f | u_i \rangle - \vec{E} \cdot \langle \phi_f | \phi_i \rangle \cdot \langle u_f | \vec{D} | u_i \rangle . \quad (\text{I.14})$$

Transitions intrabandes. Le premier terme de cette équation correspond aux transitions intrabandes (illustrées par les flèches vertes de la figure I.6). Elle laissent invariante la fonction atomique et couplent deux états enveloppes tels que $\langle \phi_f | \vec{D} | \phi_i \rangle$ est non nul. Cette dernière condition impose une variation du moment orbital enveloppe projeté sur z :

$$\Delta m_z = \pm 1 . \quad (\text{I.15})$$

La polarisation des photons émis est fixée par le produit scalaire $\vec{E} \cdot \langle \phi_f | \vec{D} | \phi_i \rangle$. Ces transitions se produisent pour des énergies assez faibles. Typiquement une transition entre les états de conduction S_e et P_e (figure I.6 b)) pour une boîte InAs se trouve à une énergie de l'ordre de quelques 10 meV. Nous ne nous y sommes pas intéressés pour ce travail de thèse.

Transitions interbandes. Le second terme correspond quant à lui aux transitions interbandes (flèches noires de la figure I.6). Elles apparaissent entre des états de valence et des états de conduction. Le produit scalaire des fonctions enveloppes $\langle \phi_f | \phi_i \rangle$ restreint ces transitions aux états enveloppes de même symétrie (S ou P dans le cas de notre système). De plus, la condition $\langle u_f | \vec{D} | u_i \rangle$ non nul impose une variation du moment cinétique total projeté sur z :

$$\Delta j_z = \pm 1 . \quad (\text{I.16})$$

Enfin, la polarisation des photons émis est fixée par le produit scalaire $\vec{E} \cdot \langle u_f | \vec{D} | u_i \rangle$.

Excitons noirs et excitons brillants. Dans une représentation paire électron-trou, ces règles de sélection permettent de déterminer quelles paires sont couplées à la lumière. Quatre états de paire électron-trou peuvent être formés à partir des états $|e \uparrow\rangle$, $|e \downarrow\rangle$, $|hh \uparrow\rangle$, $|hh \downarrow\rangle$. On caractérise ces états par la somme de leur moment angulaire total j_z^{eh} . Ainsi, ces paires seront dorénavant noté :

$$|e \uparrow, hh \downarrow\rangle \equiv |j_z^{eh} = -1\rangle \quad \text{et} \quad |e \downarrow, hh \uparrow\rangle \equiv |j_z^{eh} = +1\rangle \quad (\text{I.17})$$

$$|e \uparrow, hh \uparrow\rangle \equiv |j_z^{eh} = +2\rangle \quad \text{et} \quad |e \downarrow, hh \downarrow\rangle \equiv |j_z^{eh} = -2\rangle . \quad (\text{I.18})$$

Selon les règles de sélection interbande (équation I.16) seuls les états de paire possédant $j_z^{eh} = \pm 1$ peuvent être couplés à la lumière. La recombinaison radiative des états $|e \uparrow, hh \downarrow\rangle$ et $|\downarrow \uparrow\rangle$ entraînera donc l'émission de photons polarisés circulairement droite σ^+ ou gauche σ^- . Ce sont des états de paire électron-trou dit brillants (le terme d'exciton brillant est aussi souvent utilisé par abus de langage). Les états $|e \uparrow, hh \uparrow\rangle$ et $|e \downarrow, hh \downarrow\rangle$ sont quant à eux caractérisés par $j_z^{eh} = \pm 2$. Ne pouvant mener directement à l'émission ou l'absorption de photons, ce sont des excitons noirs. Cependant nous verrons par la suite que le spin des porteurs de ces états noirs peut se relaxer vers des états brillants, pouvant ainsi se recombiner radiativement en émettant un photon (voir chapitre IV).

1.3.3 Absorption optique du système boîte quantique - couche de mouillage

Nous nous intéressons ici à l'absorption du système boîte quantique - couche de mouillage, sans prendre en compte la barrière de GaAs. Plusieurs types de paires électrons-trous peuvent être créées au sein de notre système.

- Celle correspondant à la transition de plus basse énergie lie un électron de l'état S de conduction de la boîte et un trou de l'état S de valence. Cette paire est complètement localisée au sein de la boîte quantique et on la note $S_e S_h$. On parle d'état lié. Partant du même principe les autres états liés du système sont ceux qui lient un électron et trou des états P , on les note alors $P_e P_h$.
- On peut également avoir des transitions à plus haute énergie provenant du continuum 2D de la couche de mouillage, liant des états délocalisés de valence et des états délocalisés de conduction de cette couche. On note ces paires $W L_e W L_h$.
- D'autres transitions à une énergie intermédiaire ont été mises en évidence par Y. Toda en 1999 [73]. Ceux sont des états croisés liant des états liés de conduction de la boîte et des états délocalisés de valence de la couche de mouillage et vice et versa. Ce sont des

paires mixtes où un des porteurs est localisé dans la boîte et l'autre est délocalisé dans la couche de mouillage. On les note WL_eS_h et S_eWL_h (idem avec le niveau P , WL_eP_h et P_eWL_h). Ces états se comportent comme un quasi-continuum $2D - 0D$.

Le groupe de R. Ferreira a calculé le spectre d'absorption d'une boîte quantique typique InAs/GaAs tenant compte de la présence de la couche de mouillage [59]. Il est visible sur la figure suivante.

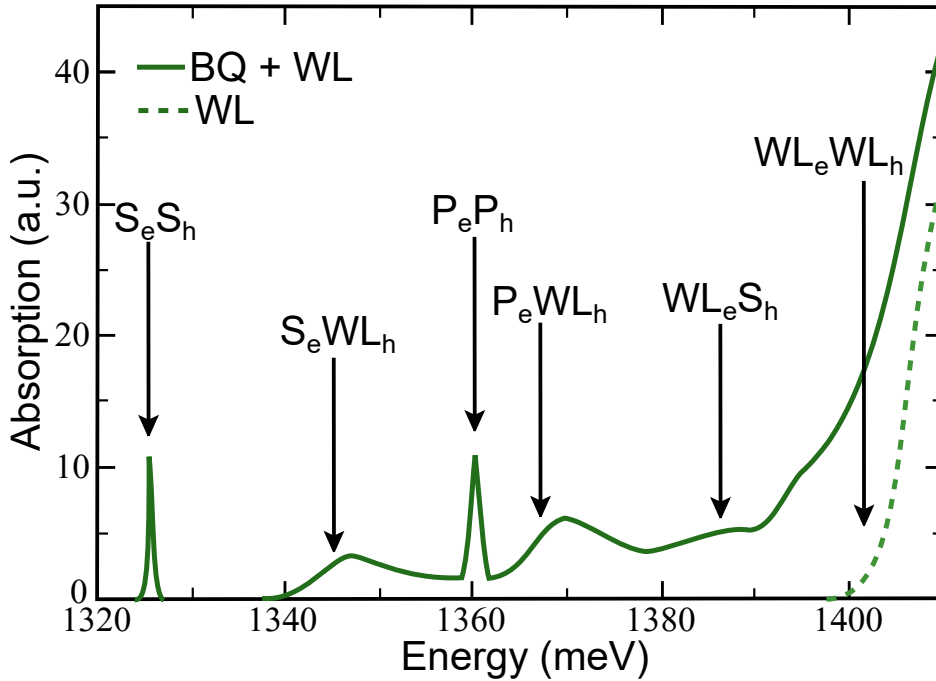


Fig. I.8 – Calcul du spectre d'absorption interbande d'une boîte quantique unique. Les raies sont identifiées dans une représentation électron-trou. Le trait plein est issu d'un calcul prenant en compte la boîte quantique et la couche de mouillage. Le trait en pointillé est un calcul pour la couche de mouillage seule. Figure adaptée de la référence [74].

Comme on peut le voir sur ce graphe, le quasi-continuum des états croisés est en résonance avec les états liés P_eP_h de la boîte quantique alors que les transitions S_eS_h sont spectralement bien isolées de ce quasi-continuum (quelques dizaines de meV).

1.3.4 Excitation non résonante de la photoluminescence

Dans le cas d'une excitation non résonante, on excite généralement notre système avec des énergies inférieures au gap GaAs ($E_g(\text{GaAs}) = 1.52 \text{ eV}$) mais supérieures au gap de la couche de mouillage ($E_g(\text{WL}) = 1.46 \text{ eV}$). La figure I.9 schématise une expérience de photoluminescence sous une telle excitation. Des porteurs libres sont injectés au sein de la couche de mouillage. Aux cours de leur propagation, ces porteurs délocalisés peuvent rencontrer des boîtes quantiques. Ils sont alors piégés par le puits de potentiel de la boîte et relaxent vers les états liés S et P de la boîte via un couplage aux phonons acoustiques et optiques du réseau ou par recombinaison Auger avec des électrons de la couche de mouillage. Ces relaxations assistées par phonons ou par effet Auger sont rendues possibles par la présence du quasi-continuum des états croisés en résonance avec les états P_eP_h de la boîte. Ces mécanismes ont

des temps caractéristiques de l'ordre de la pico-seconde [75]. Pour une discussion plus approfondie sur les mécanismes de populations et de relaxations on pourra se référer à l'HDR de Guillaume Cassabois [70].

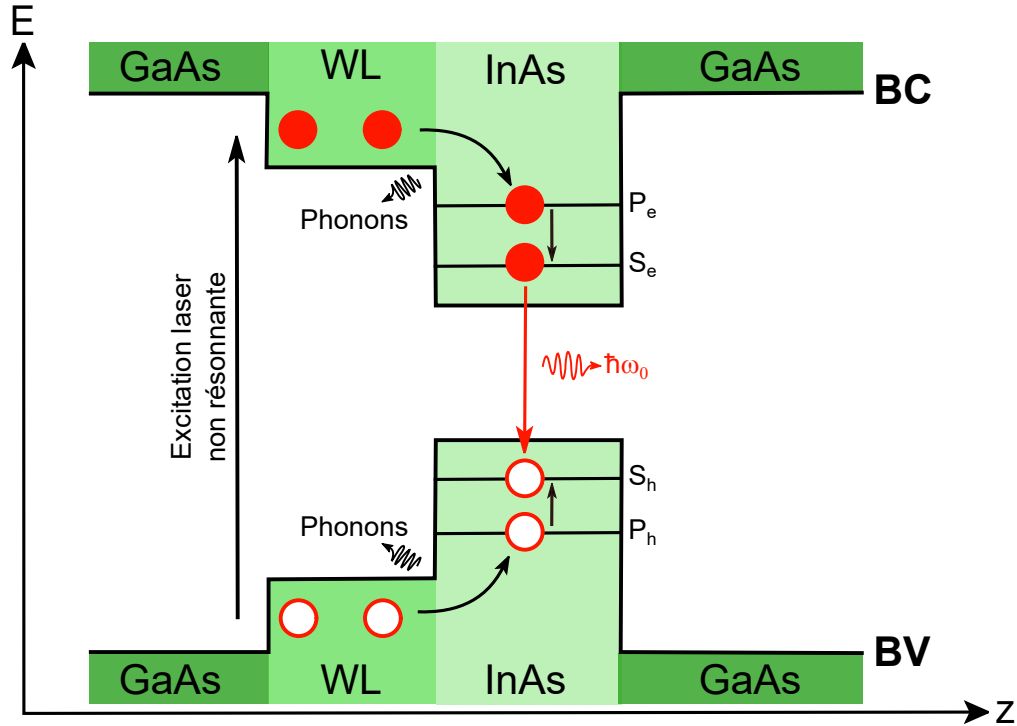


Fig. I.9 – Représentation schématique d'une expérience de photoluminescence sous excitation non résonnante. L'excitation laser crée des porteurs au sein de la couche de mouillage. Ces porteurs se recombinent ensuite vers les niveaux S_e et S_h de la boîte via l'absorption et l'émission de phonons acoustiques (ou par effet Auger) avec un temps de l'ordre de la picoseconde. Et enfin l'exciton $S_e S_h$ se recombine radiativement en émettant un photon à l'énergie de la transition $S_e S_h$. Les boules rouges représentent les électrons et les blancs les trous.

Du fait de cette résonance les porteurs des paires $P_e P_h$ subissent une relaxation vers les autres états liés de la boîte (ici $S_e S_h$) bien plus rapide que leur recombinaison radiative. Au contraire, les paires $S_e S_h$ sont bien isolées spectralement et constituent les états fondamentaux d'électron et de trou. L'évolution de leur population est alors gouvernée par la recombinaison radiative des paires électron-trou. Notons aussi que ce caractère purement radiatif est une conséquence positive du piégeage des porteurs dans la boîte quantique. Contrairement à d'autres nanostructures telles que les puits quantiques, ce piégeage évite en effet la diffusion des paires électron-trou vers des centres de recombinaison non radiative tels que les dislocations [76]. A faible puissance d'excitation, seule la raie d'émission liée à la recombinaison radiative des états $S_e S_h$ est présente alors que celle liée aux états $P_e P_h$ est absente. Notre système se réduit alors à un système à deux niveaux où le niveau fondamental est le vide d'exciton $|g\rangle$ et le niveau excité est la présence d'une paire de l'état $S_e S_h$.

Quand on augmente la puissance du laser d'excitation, plusieurs paires électron-trou sont susceptibles d'être piégées dans la boîte en même temps. Les charges se répartissent alors selon le principe d'exclusion de Pauli. Les gammes de puissances utilisées pour ce travail de

thèse restent suffisamment faibles pour se limiter au remplissage du premier niveau S de la boîte. La figure I.10 illustre les différents complexes excitoniques possibles. Le premier cas est celui où seule une paire électron-trou est présente (I.10 a). Cet exciton neutre se recombine générant un photon à l'énergie $\hbar\omega_X$. Le second cas (I.10 b) est celui où deux paires électron-trou sont présentes. On parle alors de bi-exciton. La recombinaison du premier exciton engendre l'émission d'un photon à une énergie $\hbar\omega_{XX}$ différente de $\hbar\omega_X$. Cette différence en énergie est due à l'interaction coulombienne entre les deux excitons et sa valeur dépend du degré de confinement des charges. Elle varie donc d'une boîte à une autre et elle est typiquement de l'ordre de quelques meV pour les boîtes InAs/GaAs [77]. Les deux derniers cas illustrés sur la figure I.10 c) et d) sont des situations intermédiaires dans lesquelles un exciton et une charge résiduelle (un électron ou un trou) sont piégés au sein de la boîte. On parle alors d'exciton chargé positivement (trou) ou négativement (électron). Le couplage coulombien entre l'exciton et la charge entraîne également un décalage spectral par rapport au cas de l'exciton neutre [78,79].

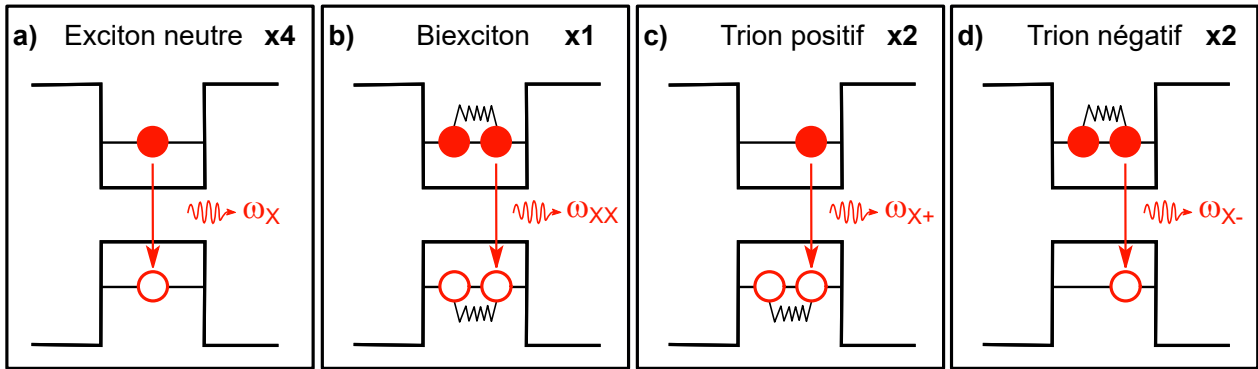


Fig. I.10 – Les complexes excitoniques du niveau S d'une boîte quantique. a) Un seul exciton est présent, il se recombine à une énergie $\hbar\omega_X$. b) Deux excitons sont présents. On parle de bi-exciton. Le premier exciton se recombine à une énergie $\hbar\omega_{XX} \neq \hbar\omega_X$ à cause de l'interaction coulombienne entre les deux excitons. c) (respectivement d)) Un exciton et un trou (respectivement un électron) sont présents. On parle d'exciton chargé positivement (respectivement négativement) ou de trion positif (respectivement négatif). Pour chaque cas de figure, le degré de dégénérescence associé aux différentes configurations de spin est mentionné.

1.4 Structure fine des différents complexes excitoniques

1.4.1 Structure fine de l'exciton neutre

Comme nous l'avons mentionné dans les paragraphes précédents, l'état $S_e S_h$ est constitué par un électron de la première couche de conduction S_e et un trou de la dernière bande de valence de trou lourd S_h . Cet état est 4 fois dégénéré. Les états $|\uparrow\downarrow\rangle$ et $|\downarrow\uparrow\rangle$ sont les excitons brillants et les états $|\uparrow\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\downarrow\rangle$ sont les excitons noirs.

Interactions coulombiennes et levée de dégénérescence entre excitons brillants et noirs. Les interactions coulombiennes entre deux états de paire électron-trou présentent un terme direct et un terme d'échange. Le terme d'échange qui couple les spins des électrons et des trous lève la dégénérescence entre les états brillants et noirs. Ce résultat est vrai quelque

soit la symétrie du potentiel coulombien. Ainsi pour une boîte à symétrie cylindrique, la levée de dégénérescence est présente. Cependant dans ce cas les états brillants restent deux fois dégénérés. Pikus et Bir ont développé un traitement général de cette interaction d'échange des excitons dans les semi-conducteurs. On pourra se référer à [80] pour un traitement complet. Les états brillants sont envoyés à des énergies plus élevées tel que la différence entre brillants et noirs Δ_{BN} est de l'ordre de quelques centaines de μeV [72]. La littérature fait également état d'une levée de dégénérescence des états noirs mais cela est surtout vrai pour des systèmes où les états de valence des trous légers et lourds sont dégénérés ou quasi-dégénérés. Dans le cas des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs, les états légers et lourds sont séparés de plusieurs dizaines de meV du fait des contraintes bi-axiales résiduelles et du confinement important au sein de la boîte quantique. On peut alors considérer en première approximation que les états noirs restent deux fois dégénérés. La figure I.11 a) illustre la structure fine d'une boîte InAs/GaAs où la symétrie de rotation est préservée.

Dédoublé des excitons noirs et brillants dans une boîte asymétrique. Cependant, les boîtes quantiques épitaxiées sont rarement invariantes par rotation autour de l'axe de croissance z . On a vu dans la partie 1.1 que les BQs ont une forme de lentille aplatie à base elliptique [81,82] brisant ainsi la symétrie de rotation. Les axes principaux de la boîte correspondent en général aux axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ que l'on notera par la suite \vec{H} et \vec{V} respectivement. Outre une anisotropie de forme, une anisotropie de composition au sein de la boîte [83] ou une anisotropie de contrainte [68] peuvent expliquer la brisure de symétrie du potentiel de confinement. Ces deux derniers cas ont été mis en évidence sur des zones frontières où la densité des boîtes quantiques est faible. La brisure de la symétrie de rotation autour de l'axe z a pour effet de lever la dégénérescence des doublets correspondants aux états brillants et noirs. Les états $|+1\rangle$, $|-1\rangle$, $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$ ne sont alors plus des états propres du système. Les nouveaux états propres sont une combinaison linéaire entre états brillants d'une part et entre états noirs d'autres part tel que :

$$|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|-1\rangle - |+1\rangle) , \quad (\text{I.19})$$

$$|V\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|-1\rangle + |+1\rangle) , \quad (\text{I.20})$$

$$|D1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|-2\rangle - |+2\rangle) , \quad (\text{I.21})$$

$$|D2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|-2\rangle + |+2\rangle) , \quad (\text{I.22})$$

avec $|H\rangle$ et $|V\rangle$ les nouveaux états brillants et $|D1\rangle$ et $|D2\rangle$ les nouveaux états noirs. Les états $|H\rangle$ et $|V\rangle$ sont couplés à des ondes polarisées linéaires orthogonales π_H et π_V dont les directions coïncident avec le grand axe \vec{H} et le petit axe \vec{V} de la boîte elliptique. Le décalage en énergie entre $|H\rangle$ et $|V\rangle$ Δ_{HV} est directement mesurable dans une expérience de micro-photoluminescence, et vaut en moyenne quelques dizaines de μeV [?,84]. Δ_{HV} est souvent appelé splitting de structure fine. Les états noirs $|D1\rangle$ et $|D2\rangle$ n'étant pas couplés à la lumière il n'est pas possible de mesurer leur décalage en énergie lors d'expérience de photoluminescence. Cependant, pour des systèmes très asymétriques, les états excitoniques $|+1\rangle$, $|-1\rangle$, $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$ se "mélagent" tous, ce qui permet d'avoir quatre états couplés à la

lumière dont deux qui ont des composantes $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ majoritaires (états pseudo-brillants) et deux où $|+2\rangle$ et $|-2\rangle$ sont majoritaires (états pseudo-noirs). Pour ces systèmes, les mesures des décalages en énergie des états pseudo-noirs ont toujours été plus faibles que pour les états pseudo-brillants [72]. On peut alors faire l'hypothèse que cela reste vrai dans notre cas. La figure I.11 b) illustre la structure fine d'une boîte InAs/GaAs de forme elliptique.

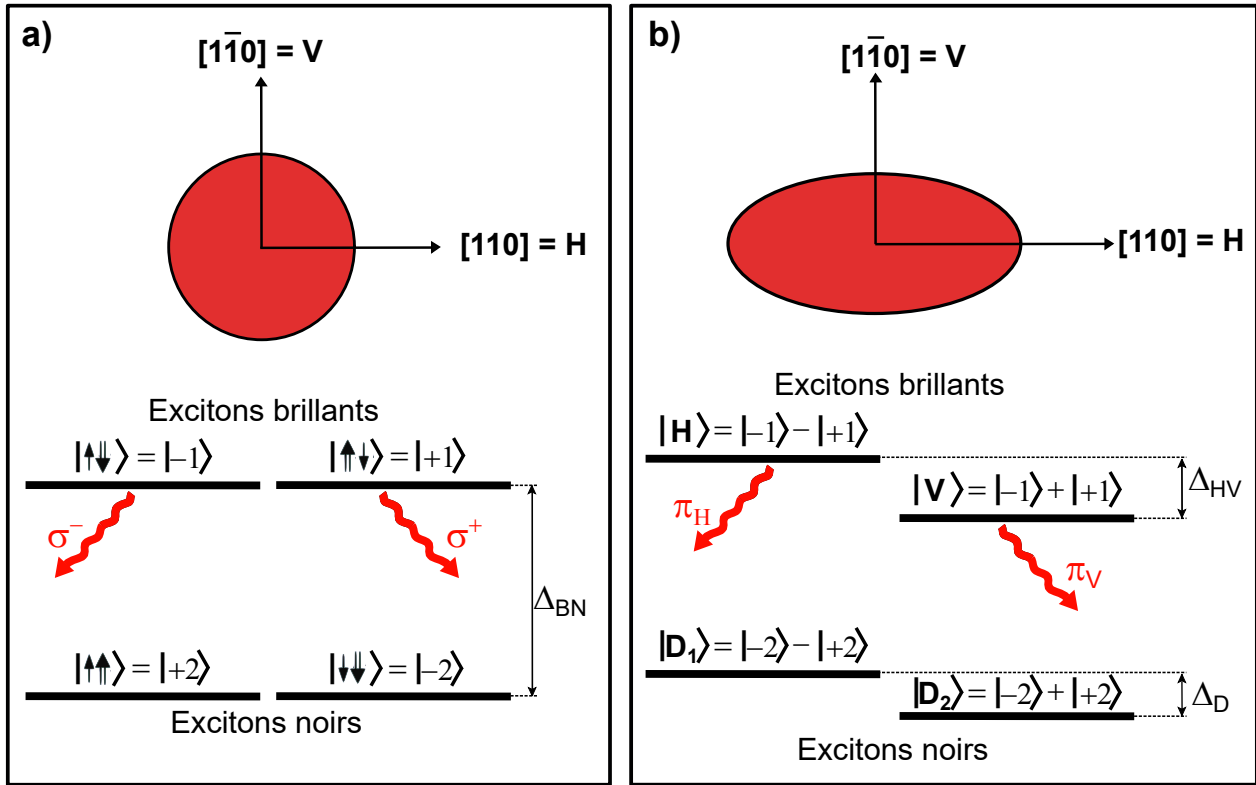


Fig. I.11 – Structure fine de l'exciton neutre selon la symétrie de la boîte. a) Boîte à symétrie cylindrique : les interactions coulombiennes d'échange lèvent la dégénérescence entre états noirs et brillants. La différence en énergie Δ_{BN} est de quelques centaines de μeV [72]. b) Boîte à symétrie réduite : levée de dégénérescence des états brillants et noirs. Δ_{HV} est en générale de l'ordre de quelques dizaines de μeV et $\Delta_D < \Delta_{HV}$ [85]. Ici le facteur de normalisation pour les quatre états est omis par soucis de simplicité.

1.4.2 Structure fine de l'émission du bi-exciton neutre

Le bi-exciton neutre est composé de deux paires électron-trou piégées dans la boîte. Du fait du principe d'exclusion de Pauli, l'état bi-excitonique $|XX\rangle$ n'est pas dégénéré (figure I.10 b)). Les spins des trous et des électrons ne peuvent prendre qu'une seule configuration, à savoir deux électrons de spin opposés et deux trous de pseudo-spin opposés. L'état $|XX\rangle$ est un état singulet, qui s'écrit avec des états de spin électronique et de pseudo-spin de trou antisymétrisés :

$$|XX\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) . \quad (\text{I.23})$$

La figure I.12 illustre l'émission radiative partant d'une configuration bi-excitonique. La première paire électron-trou peut se recombiner via deux canaux $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$. La recombinaison $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ mène à l'émission d'un photon polarisé linéairement π_H . De la même façon, la recombinaison $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$ mène à l'émission d'un photon polarisé linéairement π_V . Ainsi la recombinaison radiative du bi-exciton possède une structure fine identique à celle de l'exciton. Il est important de noter que l'on parle ici de la structure fine de l'émission du bi-exciton car en toute rigueur, il n'y a qu'un état bi-excitonique, donc on ne peut pas parler de structure fine du bi-exciton.

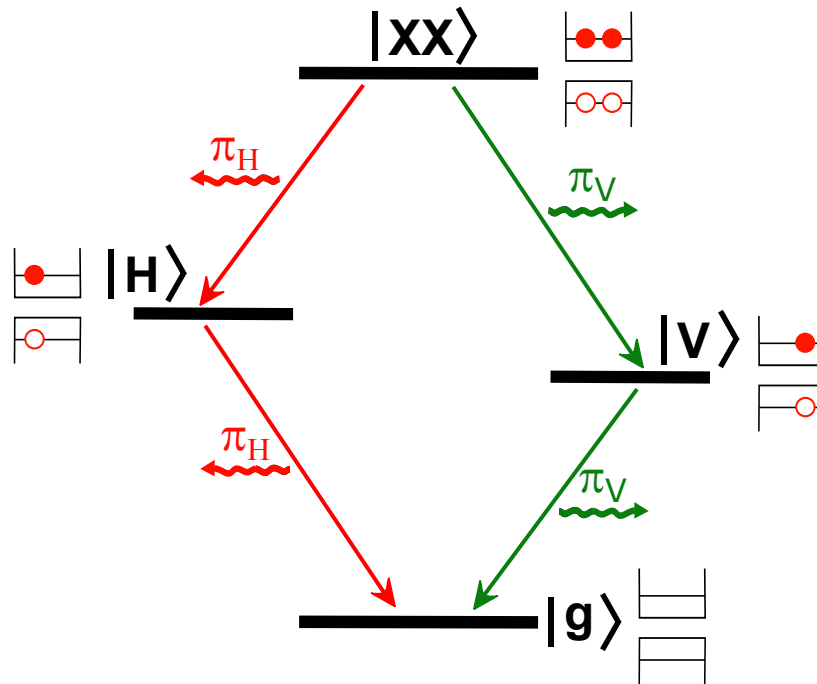


Fig. I.12 – Cascade radiative du bi-exciton neutre. Schéma à 4 niveaux montrant le niveau du bi-exciton $|XX\rangle$ se recombinant en cascade via les états brillants $|H\rangle$ et $|V\rangle$ en émettant des photons polarisés verticalement et horizontalement. Ici les états noirs sont omis par soucis de simplicité.

1.4.3 Structure fine des trions positifs et négatifs

Un trion est composé de deux charges de même signe possédant un spin opposé et d'une charge du signe opposé au premier doublet. Dans ce cas l'interaction coulombienne d'échange devient nulle du fait du théorème de Kramer. Ce théorème stipule qu'un système contenant un nombre impair de fermions (qui sont ici les électrons et les trous) reste au moins deux fois dégénérés si ce système est décrit par un hamiltonien symétrique par inversion temporelle ce qui est le cas pour un trion en l'absence d'un champ magnétique extérieur [86]. Un trion est composé de deux charges de même signe possédant un spin opposé et d'une charge du signe opposé au premier doublet. Comme la charge supplémentaire peut prendre deux valeurs de spin différents, un trion est deux fois dégénérés. Les deux états associés au trion positif

s'écrivent :

$$|X_{\uparrow}^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\rangle, \quad (\text{I.24})$$

$$|X_{\downarrow}^+\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\rangle. \quad (\text{I.25})$$

De la même manière, les deux états associés au trion négatif s'écrivent :

$$|X_{\uparrow}^-\rangle = |\uparrow\rangle \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{I.26})$$

$$|X_{\downarrow}^-\rangle = |\downarrow\rangle \otimes \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle). \quad (\text{I.27})$$

La figure I.13 résume le mécanisme de recombinaison radiative pour les cas des trions. La recombinaison radiative d'un trion $|X_{\uparrow}^+\rangle \rightarrow |\uparrow\rangle$ (cas du trion positif qui laisse un état à un seul trou $|\uparrow\rangle$) ou $|X_{\downarrow}^-\rangle \rightarrow |\downarrow\rangle$ (cas du trion négatif qui laisse un état à un seul électron $|\downarrow\rangle$) mène à l'émission d'un photon polarisé circulairement σ^+ ou σ^- selon l'orientation du spin de la charge supplémentaire.

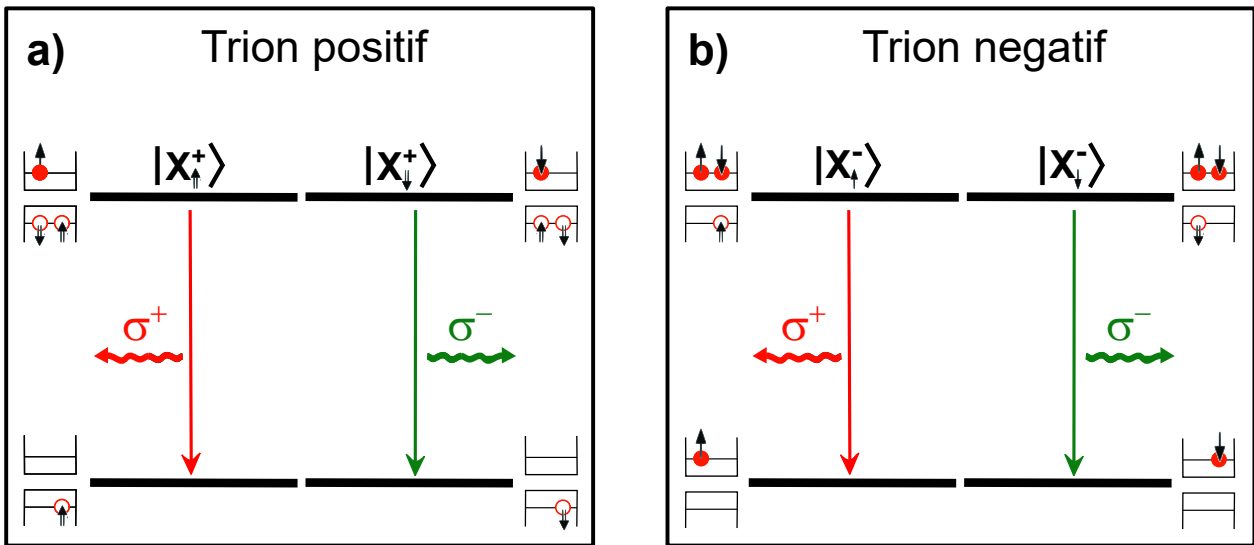


Fig. I.13 – Recombinaison radiative des trions dans la représentation électron-trou. a) Cas du trion positif. b) Cas du trion négatif.

1.5 Conclusion intermédiaire

Dans cette première partie de chapitre, nous avons discuté des propriétés électroniques générales des boîtes quantiques auto-assemblées et plus particulièrement des boîtes InAs/GaAs. Le procédé de fabrication de ces systèmes par épitaxie leur confère une morphologie typique de lentille aplatie dans la direction de croissance z avec une base elliptique dans le plan (x, y) . Les contraintes bi-axiales et le fort confinement au sein de la boîte nous a permis de montrer que les états de valence impliquent uniquement la bande des trous lourds. A cause des états croisés avec la couche de mouillage, seuls les états discrets $S_e S_h$ sont bien isolés

spectralement. Nous avons alors passé en revue les complexes excitoniques associés aux états S : l'exciton et le bi-exciton neutre, et les trions, et discuté leur structure fine en l'absence de champ magnétique. Nous verrons dans le chapitre III que la nature du dipôle optique associé aux différents complexes excitoniques a un impact sur la technique de localisation tout optique que nous proposons et démontrons. De plus, l'analyse des mécanismes de spin-flip conduite au chapitre IV s'appuiera sur la description complète du système biexciton neutre - exciton neutre.

Nous allons voir dans la prochaine section qu'une boîte quantique dans un matériau massif non structuré présente des limites importantes liées à la faible extraction de la lumière. Il est alors crucial de placer la boîte dans un environnement photonique bien choisi pour en tirer tous les avantages.

2 Structures photoniques pour le contrôle de l'émission spontanée

L'interaction matière-rayonnement est décrite par les trois mécanismes fondamentaux : absorption, émission stimulée et émission spontanée. Comme nous l'avons vu au cours de la section précédente l'émission spontanée est un processus aléatoire et irréversible où un état électronique excité relaxe vers un état de plus faible énergie en émettant un photon. Ce phénomène se produit de manière efficace lorsqu'une transition électronique présentant un dipôle optique est couplée à un continuum de modes optiques. Après avoir défini ce phénomène dans un environnement non structuré (matériaux massifs) nous allons discuter deux stratégies pour contrôler efficacement l'émission spontanée à l'aide de structures diélectriques (l'utilisation des résonances plasmoniques via des structures métalliques sera également rapidement). La première est l'utilisation de cavités optiques et la seconde l'utilisation de guides d'onde. Ce travail de thèse se concentre sur la deuxième stratégie avec l'utilisation de nanofils photoniques que nous présenterons plus en détail dans le chapitre II.

2.1 Règle d'or de Fermi - Taux d'émission spontanée

On modélise notre émetteur comme un système à deux niveaux d'énergie avec l'état excité $|e\rangle$ et l'état fondamental $|g\rangle$. Ces deux niveaux sont séparés par une énergie $\hbar\omega_{em}$ correspondant à une longueur d'onde λ_{em} dans le vide. Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.3.2 l'hamiltonien de couplage entre l'émetteur et le champ électromagnétique s'écrit :

$$H = -\vec{D} \cdot \vec{E}(\vec{r}_{em}) , \quad (\text{I.28})$$

où \vec{r}_{em} est la position de l'émetteur, \vec{D} est l'opérateur dipôle électronique et $\vec{E}(\vec{r}_{em})$ est l'opérateur du champ électrique à la position de l'émetteur. On considère un continuum de modes μ de densité $\rho_{\mu}(\omega_{em})$ et de polarisation donnée. Initialement les modes sont dans leur état dit "vide" $|0\rangle$: ils ne contiennent pas de photon. La règle d'or de Fermi nous indique que la population de l'état excité $|e\rangle$ décroît exponentiellement dans le temps avec un taux Γ_{μ} , donné par :

$$\Gamma_{\mu} = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle e, 0 | -\vec{D} \cdot \vec{E}(\vec{r}_{em}) | g, 1 \rangle|^2 \rho_{\mu}(\omega_{em}) . \quad (\text{I.29})$$

Pour un dipôle optique linéaire, on peut alors réécrire ce taux d'émission spontanée en séparant les contributions associées aux caractéristiques propres de l'émetteur et celles associées à son environnement photonique tel que :

$$\Gamma_\mu = \frac{2\pi}{\hbar^2} (d_{\text{em}}^2 \cdot \cos^2\theta \cdot E_{\text{zpf}}^2(\vec{r}_{\text{em}}) \cdot \rho_\mu(\omega_{\text{em}})) . \quad (\text{I.30})$$

Ce taux d'émission dépend, d'une part, de l'environnement électromagnétique avec l'intensité des fluctuations de point zéro du champ électrique vues par l'émetteur $E_{\text{zpf}}^2(\vec{r}_{\text{em}}) = |\langle 0|E^2(\vec{r}_{\text{em}})|1\rangle|$ et la densité spectrale de modes $\rho_\mu(\omega_{\text{em}})$ accessibles à la fréquence ω_{em} . D'autre part, il dépend des caractéristiques de l'émetteur avec le terme du dipôle associé à la transition électronique $d_{\text{em}}^2 = |\langle e|\vec{D}|g\rangle|^2$ et de la direction de ce dipôle par rapport à la polarisation du champ électrique local via le terme $\cos^2\theta$ (ce terme doit être moyenné si il y a plusieurs modes). En 1946, Purcell est le premier à envisager de manière théorique le contrôle du taux d'émission spontanée en proposant d'intégrer l'émetteur dans un environnement électromagnétique contrôlé : une cavité résonante. Ceci augmente les fluctuations de point zéro et la densité spectrale associées au mode de cavité. En conséquence, l'émission spontanée dans le mode de cavité est accélérée.

Contrôle de l'émission spontanée : figures de mérite. Pour caractériser les performances d'un environnement photonique donné, on a recours à plusieurs figures de mérite importantes. La première est le facteur de Purcell F_p qui se définit comme le rapport entre Γ_M , le taux d'émission spontanée dans le mode d'intérêt M , et Γ_0 le taux d'émission dans un environnement non structuré qui sert de référence (pour nous le semiconducteur massif) :

$$F_p = \frac{\Gamma_M}{\Gamma_0} . \quad (\text{I.31})$$

Ce facteur a été initialement introduit pour les cavités optiques où l'accélération de l'émission peut être très importante du fait d'un très bon confinement spatial et spectral du mode. Par extension, on l'utilise aussi dans d'autres structures, comme les guides d'ondes. On parle alors de facteur de Purcell généralisé.

La seconde figure de mérite, plus générale, est le facteur β défini comme la fraction de l'émission spontanée couplée au mode optique d'intérêt :

$$\beta = \frac{\Gamma_M}{\Gamma_M + \gamma} , \quad (\text{I.32})$$

où Γ_M est le taux d'émission spontanée couplée au mode M et γ le taux d'émission dans tout le continuum des autres modes (on néglige ici les canaux de recombinaisons non-radiatifs qui jouent un rôle négligeable dans nos systèmes). Une structure photonique mono-mode est une structure pour laquelle β se rapproche de 1. La condition $\Gamma_M \gg \gamma$ peut être atteinte en augmentant Γ_M (effet Purcell avec les cavités optiques) ou bien en réduisant suffisamment γ . Une forte inhibition de l'émission dans les modes non souhaités est possible via l'utilisation de guide d'onde en exploitant un effet d'écrantage diélectrique ou un cristal photonique.

Considérons dans un premier temps une boîte quantique dans un environnement non structuré, plus particulièrement dans un milieu diélectrique linéaire, homogène et isotrope. Ce premier cas de figure sera notre référence (Γ_0) avant de pouvoir quantifier les modifications apportées par des structures photoniques.

2.2 Émission spontanée dans un matériau massif

Le milieu diélectrique dans lequel est immergé l'émetteur possède un indice de réfraction n . On considère en première approximation que n est constant sur toute la plage de fréquence en jeu. En d'autres termes nous négligeons les effets de dispersion. On peut décrire l'environnement électromagnétique dans une base d'ondes planes. Le champ associé à ces ondes s'écrit de façon générale :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{P} \exp[i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})] , \quad (\text{I.33})$$

où la polarisation \vec{P} est orientée perpendiculairement au vecteur d'onde \vec{k} . La relation de dispersion s'écrit :

$$\omega = \left(\frac{c}{n}\right) |\vec{k}| . \quad (\text{I.34})$$

Il faut commencer par déterminer la densité spectrale de modes ρ_{3D} . Pour faciliter les calculs on se place dans un volume fini $V = L^3$, où L est très grand devant la longueur d'onde λ , et on applique les conditions aux limites périodiques. Pour une polarisation donnée, le nombre de modes δN accessibles pour un vecteur d'onde dont la norme est comprise entre k et $k + \delta k$ s'écrit :

$$\delta N = \frac{4\pi k^2}{\left(\frac{2\pi}{L}\right)^3} \delta k = 2V \left(\frac{k}{2\pi}\right)^2 \delta k . \quad (\text{I.35})$$

En utilisant la relation de dispersion et en ayant à l'esprit que l'indice de réfraction n est ici constant, on arrive facilement à :

$$\rho_{3D}(\omega) = 2 \frac{\delta N}{\delta \omega} = \frac{V}{\pi^2} \left(\frac{n}{c}\right)^3 \omega^2 . \quad (\text{I.36})$$

Un facteur 2 a été rajouté pour prendre en compte les deux polarisations possibles du champ. La densité spectrale étant calculée, il nous faut maintenant trouver l'amplitude des fluctuations de point zéro associées à un mode donné. Pour cela, nous utilisons une approche semi-classique, sans rentrer dans le formalisme de la mécanique quantique. Nous normalisons alors le champ électrique :

$$\vec{E}_0(\vec{r}, t) = \alpha_0 \vec{E}(\vec{r}, t) . \quad (\text{I.37})$$

de telle sorte que l'énergie électromagnétique du mode soit égale à $\frac{\hbar\omega}{2}$, qui est l'énergie de point zéro d'un oscillateur harmonique quantique. On peut alors exprimer cette énergie en intégrant sur tout le volume considéré :

$$\frac{1}{2} \hbar\omega = \iiint \varepsilon_0 n^2 |\vec{E}_0(\vec{r})|^2 d^3 \vec{r} = \alpha_0^2 \varepsilon_0 n^2 \iiint |\vec{E}(\vec{r})|^2 d^3 \vec{r} \quad (\text{I.38})$$

$$= \alpha_0^2 \varepsilon_0 n^2 V . \quad (\text{I.39})$$

Le champ normalisé s'écrit donc :

$$\vec{E}_0(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\varepsilon_0 n^2 V}} \vec{E}(\vec{r}, t) . \quad (\text{I.40})$$

En utilisant la forme générale du taux d'émission spontanée I.30 nous trouvons la forme analytique du taux d'émission spontanée Γ_0 :

$$\Gamma_0 = \frac{1}{3} \frac{d_{em}^2 \omega_{em}^3 n}{\hbar \varepsilon_0 c^3} . \quad (\text{I.41})$$

Le facteur $1/3$ vient du fait que l'on moyenne sur toutes les orientations relatives entre la polarisation et la direction du dipôle polarisation du dipôle (moyennage du terme en $\cos^2\theta$ de l'équation I.30). On voit que dans cette expression le volume V a disparu. Nous allons maintenant voir comment contrôler le taux d'émission via l'utilisation de structures photoniques diélectriques comme les cavités optiques ou les guides d'ondes.

2.3 Microcavités optiques

La première stratégie qui a été mise en place pour contrôler le taux d'émission spontanée est l'incorporation d'un émetteur au sein d'une cavité optique. Cette stratégie permet d'accélérer l'émission spontanée via le couplage résonant entre un l'émetteur et un mode de cavité. Ce n'est qu'en 1983 que l'accélération de l'émission spontanée prévue par Purcell a été observée dans le groupe S. Haroche [87] en couplant un unique atome de Rydberg à une cavité micro-onde. Puis une quinzaine années plus tard, cet effet a été observé pour un ensemble de boîtes quantiques InAs intégrées au sein d'un micropilier dans l'équipe de J.M. Gérard [88,89]. D'autres types de structures ont ensuite été mises en place avec les micro-disques et les cristaux photoniques bi-dimensionnelles [25].

2.3.1 Taux d'émission dans un mode de cavité

Couplage fort et couplage faible. Une cavité optique permet de confiner la lumière dans les trois directions de l'espace discrétisant ainsi la densité de modes optiques accessibles aux photons émis par l'émetteur (cet émetteur pouvant également absorber des photons des modes de cavité). On s'intéresse à un unique mode à la fréquence ω_c . Il y a donc trois systèmes en interaction à considérer : l'émetteur modélisé comme un dipôle linéaire émettant des photons à la fréquence ω_{em} , le mode unique de la cavité à la fréquence ω_c et le continuum des modes optiques d'espace libre. Plusieurs paramètres permettent de caractériser le couplage entre ces trois systèmes. Le couplage entre la cavité et le continuum d'espace libre est caractérisé par le taux de photons perdus par la cavité. On le note $\Gamma_c = \omega_c/Q$ avec Q le facteur de qualité de la cavité. Il est lié à la durée pendant laquelle un photon est piégé dans la cavité et il est contrôlé par la géométrie de la cavité. Le couplage entre l'émetteur quantique et le continuum d'espace libre est caractérisé par le taux d'émission spontanée pour des directions ou des fréquences qui ne coïncident pas avec la résonance de la cavité. On le note γ_{QD} . Et enfin le couplage entre l'émetteur et le mode de cavité est noté g . Il détermine à quelle vitesse l'énergie s'échange de manière cohérente entre l'émetteur et le mode de cavité.

Le système global est dans le régime dit de couplage faible lorsque $g < (\Gamma_c, \gamma_{QD})$. Dans ce régime les photons de la cavité sont perdus via le continuum d'espace libre avant qu'ils soient réabsorbés par l'émetteur. Le processus d'émission reste par conséquent irréversible. Le couplage fort est atteint lorsque $g > (\Gamma_c, \gamma_{QD})$. Dans ce cas le processus d'émission de photons est réversible puisque les photons émis par l'émetteur peuvent être réabsorbés par celui-ci avant qu'ils ne s'échappent de la cavité. Ce régime mène à la formation d'états

mixtes émetteur-mode (oscillations de Rabi) à la résonance [15]. Ce phénomène peut être très utile pour réaliser des couplages cohérents et des systèmes quantiques intriqués et indiscernables [90–92]. Cependant la mise en place d'un couplage fort est difficile d'un point de vue technologique. Nous n'aborderons pas en détail ce régime dans ce manuscrit.

Effet Purcell. Dans le cadre du régime de couplage faible on peut considérer le système couplé entre le mode de cavité et le continuum d'espace libre comme un quasi-mode dont la densité d'états possède un profil Lorentzien avec une largeur à mi-hauteur $\Delta\omega_c = \Gamma_c$:

$$\rho_{0D}(\omega) = \frac{2}{\pi\Delta\omega_c} \frac{\Delta\omega_c^2}{4(\omega - \omega_c)^2 + \Delta\omega_c^2}. \quad (\text{I.42})$$

La densité d'état est maximale pour un émetteur à résonance. En normalisant le champ comme dans la section précédente 2.2, on détermine les fluctuations de point zéro vues par l'émetteur. Nous trouvons le maximum de l'amplitude des fluctuations de point zéro $E_{\text{zpf}}^{\text{max}}$ pour un dipôle se trouvant au maximum du champ électrique avec une direction de polarisation alignée avec la polarisation du champ :

$$E_{\text{zpf}}^{\text{max}} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\text{em}}}{2\varepsilon_0 n^2 V_{\text{eff}}}} \quad \text{avec} \quad V_{\text{eff}} = \frac{\iiint n^2(\vec{r}) |\vec{E}(\vec{r})|^2 d^3\vec{r}}{n^2 \max(|\vec{E}(\vec{r})|^2)}, \quad (\text{I.43})$$

et n l'indice de réfraction à la position de l'émetteur et V_{eff} le volume effectif du quasi-mode. Ce dernier caractérise le confinement spatial du mode de cavité. En utilisant l'équation I.30 et I.42 pour un émetteur à la résonance avec le mode de cavité ($\omega_{\text{em}} = \omega_c$) on trouve le taux d'émission spontanée maximum :

$$\Gamma_{\text{cav}}^{\text{max}} = \frac{2d_{\text{em}}^2 Q}{\hbar\varepsilon_0 n^2 V_{\text{eff}}}. \quad (\text{I.44})$$

En utilisant le taux d'émission Γ_0 du même émetteur dans un matériaux massif d'indice de réfraction n I.41 on trouve le facteur de Purcell du mode de cavité :

$$F_p = \frac{\Gamma_{\text{cav}}^{\text{max}}}{\Gamma_0} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q(\lambda_c/n)^3}{V_{\text{eff}}}. \quad (\text{I.45})$$

Il est donc possible d'accélérer le taux d'émission en augmentant le facteur de qualité Q et en réduisant le volume effectif V_{eff} du mode discret considéré. Comme évoqué en début de section il existe différents types de cavités optiques permettant un confinement plus ou moins important et donc une accélération de l'émission plus ou moins forte.

2.3.2 Quelques exemples de cavités optiques

Plusieurs approches ont été envisagées au cours des vingt dernières années pour réaliser des cavités optiques diélectriques. La figure I.14 illustre les principales approches, qui sont rapidement discutées dans la suite. En raison de progrès technologiques constants, leurs performances ne cessent de s'améliorer.

Cavités à micro-pilier. Les cavités à micro-pilier I.14 a) sont constituées de deux miroirs de Bragg réalisés par épitaxie planaire en alternant des couches d'indice de réfraction n_1 et n_2 (les matériaux GaAs et AlGaAs sont souvent utilisés) dont l'épaisseur vaut $\lambda/4n_i$ ($i = 1, 2$) avec λ la longueur d'émission de l'émetteur à la résonance de la cavité. Le micro-pilier est ensuite formé par gravure sèche. L'émetteur est positionné dans une couche plus épaisse λ/n_1 entre les deux miroirs de Bragg où se trouve confiné le mode de cavité. La réflectivité des miroirs de Bragg est contrôlée en ajustant le nombre de couches les constituant. En général les deux miroirs n'ont pas le même nombre de couches permettant d'obtenir un miroir inférieur très réfléchissant et un miroir supérieur avec une transmission plus élevée. Ceci dégrade Q mais permet d'extraire les photons préférentiellement vers le haut de la structure, plutôt que vers le substrat. Le diamètre du micro-pilier est un paramètre crucial de ses structures. Il doit être suffisamment faible pour restreindre l'extension latérale du mode est ainsi avoir un volume effectif faible. Cependant des diamètres inférieurs à 1-2 μm réduisent les facteurs de qualité [93]. Les volumes effectifs atteints dans la littérature sont de l'ordre de $V_{\text{eff}} \sim 10(\lambda/n)^3$ pour des facteurs de qualité de l'ordre de $Q \sim 5 \times 10^4$. On peut citer [94] où un facteur de qualité de 6.5×10^4 pour un diamètre autour de 7 μm ou bien [95] où $Q = 1.65 \times 10^5$.

Cavités à cristal photonique. L'utilisation de cavités à cristal photonique est également une approche intéressante. C'est en 2005 qu'une équipe a démontré pour la première fois un contrôle de l'émission spontanée avec une boîte quantique unique intégrée à une cavité à cristal photonique [28]. Ces cavités sont obtenues en insérant un défaut local dans une membrane bi-dimensionnelle où des trous sont gravés périodiquement. Il existe de nombreux types de cavités à cristal photonique, mais l'une des plus performante et répandue est celle obtenue en supprimant trois trous d'une membrane à périodicité triangulaire I.14 b). Ces structures permettent d'obtenir des volumes effectifs très faibles de l'ordre de $(\lambda/n)^3$ et de réduire fortement l'émission dans les modes d'espace libre [96]. Cependant les facteurs de qualité sont en général plus faibles qu'avec les cavités à micro-piliers. Un facteur de qualité $Q = 3 \times 10^4$ a été reporté dans le groupe de Hennessy *et al.* en 2007 [90] avec une membrane GaAs. L'utilisation de cavité en silicium (émission autour de 1.55 μm) permet néanmoins de réduire la sensibilité aux défauts de fabrication et un facteur de qualité $Q = 2 \times 10^6$ a été atteint en 2014 [97].

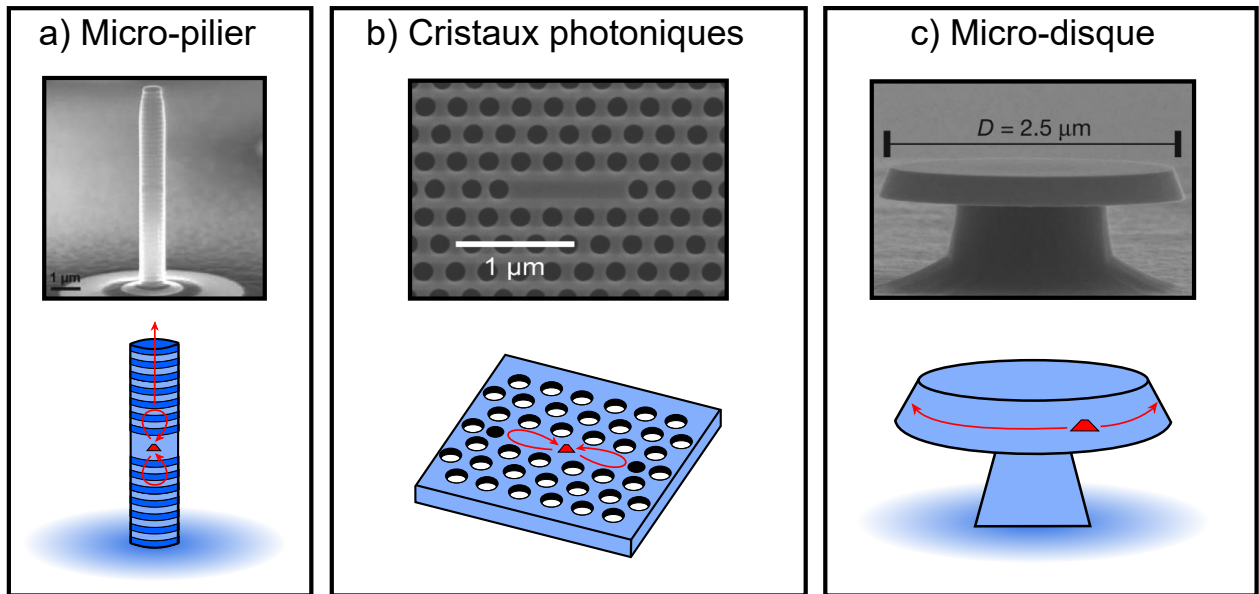


Fig. I.14 – Exemples de micro-cavité optiques. Chaque panneau montre une image réalisée par microscope électronique à balayage d'une structure réelle et un schéma illustrant le couplage entre l'émetteur et la structure photonique. a) Cavité à micro-pilier contenant une boîte unique InAs entre les deux miroirs de Bragg AlGaAs/GaAs. Le nombre de couche du miroir supérieur diffère de celui du miroir inférieur pour permettre l'extraction de la lumière. L'image est tirée de [91]. b) Cavité à cristal photonique bi-dimensionnel sur membrane. La boîte quantique est au centre de la zone sans trous où le mode de cavité est confiné. Image tirée de [90]. c) Cavité à micro-disque accueillant une couche de boîte. Les émetteurs se couplent aux modes de galerie du disque. Image tirée de [98]. Figure adaptée de [25].

Cavités à micro-disque. Finalement, les cavités micro-disque sont une autre classe de cavités optiques qui permettent d'obtenir de très fort facteur de qualité. Comme leur nom l'indique ce sont des disques diélectriques dont le diamètre est de l'ordre 1-10 μm pour une épaisseur égale à λ/n . Ici le confinement de la lumière est dû à une série de réflexions totales internes et les modes de cavité sont localisés en périphérie du disque (I.14 c). Ces modes sont appelés modes de galerie. La première démonstration de l'accélération de l'émission spontanée d'une boîte quantique unique InAs dans un micro-disque GaAs a été réalisée par B. Gayral en 2001 [27]. Les volumes effectifs sont en général plus élevés que dans l'approche précédente mais cela est compensé par des facteurs de qualité plus élevés. Avec des micro-disques en GaAs Q peut atteindre $Q = 4 \times 10^5$ [98] et pour des micro-disques en Si $Q = 5 \times 10^6$ [99]. Cependant l'extraction des photons via les micro-disques est délicate, la lumière se propageant dans le plan du disque.

2.3.3 Avantages et limites des micro-cavités optiques

Le contrôle de l'émission spontanée à l'aide de micro-cavités diélectriques n'a eu de cesse de s'améliorer au cours des vingt dernières années menant à des effets Purcell très grands et donc à un β très proche de 1. J. M. Gérard et al. ont été les premiers à démontrer une accélération $F_p \sim 5$ en 1998 à l'aide d'une cavité à micro-piliers [26]. Dernièrement $F_p \sim 65$ a pu être atteint en 2018 grâce à une cavité à cristal photonique [100]. L'accélération de

l'émission a permis d'obtenir des photons très indiscernables [31]. Cependant cette approche souffre de quelques limitations du fait que l'émetteur doit se trouver à la résonance du mode de cavité. Cette résonance doit être spectrale (la boîte quantique doit émettre une lumière monochromatique à la fréquence du mode cavité) et spatiale (l'émetteur doit se trouver au maximum du champ électrique à l'intérieur de la cavité). Comme nous l'avons vu dans la première partie de ce chapitre, la méthode de croissance Stransky-Krastanov fait croître des boîtes quantiques de manière aléatoire dans le plan orthogonal à la direction de croissance z . De plus il existe une dispersion dans la taille, la forme et la composition des BQs pour une même croissance menant à une dispersion spectrale inhomogène autour de 20 – 50 meV. Il n'est possible de contrôler la longueur d'émission de la boîte que sur une plage de ~ 1 meV en jouant sur la température et cela s'accompagne généralement d'un élargissement spectral. On comprend alors qu'il est très difficile sur un échantillon donné d'obtenir une cavité optimale. Ces difficultés ont été surmontées au cours des dix dernières années avec la mise en place de procédés de fabrication déterministes. Cela consiste à localiser spatialement et spectralement la boîte quantique avant de graver la cavité. C'est le groupe de A. Imamoglu qui, en premier, a réalisé des cavités connaissant la position de l'émetteur à 50 nm près. Ils ont utilisé un microscope électronique à balayage [101] ou bien un microscope à force atomique [90]. D'autres équipes ont résolu la condition spatiale en "forçant" la nucléation des boîtes quantiques dans des trous à forme pyramidale [102,103]. Cependant ces techniques ne peuvent pas donner l'énergie d'émission de l'émetteur. Le groupe de P. Senellart a réussi à surmonter ce problème en développant une technique de lithographie in situ déterministe [104]. La position et l'énergie sont repérées à $T = 10$ K par photoluminescence, puis un laser insole une résine photosensible déposée à la surface de l'échantillon pour définir les cavités. Ces techniques permettent l'obtention de cavités sur boîte unique de très grande qualité mais sont assez complexes à mettre en place demandant un grand effort technologique. De plus il est important que l'émetteur soit monochromatique. Cette condition est remplie avec des boîtes quantiques auto-assemblées à température cryogénique mais ce n'est pas le cas des émetteurs large bande comme les centres NV dans le diamant. Enfin, il est important de noter que la réalisation de paires de photons intriqués ou le développement de calcul quantique en optique linéaire demandent un grand nombre de sources de photons uniques en accord spectral [105]. La réalisation de telles systèmes semble très difficile avec des cavités optiques. Pour dépasser toutes ces limitations, l'utilisation d'un guide d'onde (au lieu d'une cavité résonante) a été envisagée pour offrir un contrôle de l'émission spontanée sur une large bande passante. Nous allons détailler cette stratégie dans la suite de ce chapitre.

2.4 Guides d'ondes

Une seconde stratégie pour contrôler le taux d'émission spontanée est de placer l'émetteur au sein d'un guide d'onde optique. Plusieurs types de guides d'onde ont été développés depuis le début des années 2000 pour se rapprocher de la limite $\beta \rightarrow 1$. Les guides d'onde à cristaux photoniques ou à plasmons permettent une accélération de l'émission dans un mode donné comme pour les cavités. Cependant une autre méthode pour augmenter β est d'inhiber fortement l'émission dans les modes d'espaces libre γ (voir équation I.32). Les guides à cristaux photoniques et les fils photoniques peuvent permettre cette forte inhibition. Comme pour les cavités optiques on peut calculer le taux d'émission spontanée couplée à un mode guidé et en déduire un facteur de Purcell.

2.4.1 Taux d'émission dans un mode guidé

Dans un guide d'onde, la lumière peut se propager librement dans une seule direction alors qu'elle subit un fort confinement dans les deux directions transverses. Pour plus de simplicité on considère un guide d'onde infini suivant la direction z et supportant un seul mode guidé. La forme générale du champ électrique associé à ce mode guidé s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}(\vec{r}_\perp) \exp[i(\omega t - k_z z)] , \quad (\text{I.46})$$

où $\vec{E}(\vec{r}_\perp)$ est la distribution du champ dans le plan perpendiculaire à l'axe z . Ici, le champ se propage selon z avec une constante de propagation k_z et à la fréquence angulaire ω .

Pour trouver le taux d'émission spontanée dans un mode guidé, il faut déterminer la densité spectrale de modes accessibles ρ_{1D} . Pour faciliter les calculs on se place dans le cas où le fil a une longueur finie $L \gg \lambda_{\text{em}}$ (λ_{em} étant la longueur d'onde d'émission de l'émetteur modélisé comme un dipôle ponctuel) et on applique les conditions aux limites périodiques : $\vec{E}(z, \vec{r}_\perp, t) = \vec{E}(z + L, \vec{r}_\perp, t)$. Il en résulte une quantification de k_z avec un intervalle $\Delta k_z = 2\pi/L$. La densité de modes présents dans la structure est alors :

$$\rho_{1D}(\omega) = \begin{cases} 0 & \text{si } \omega < \omega_{\text{co}} \\ 2 \frac{L}{2\pi |v_g(\omega)|} & \text{si } \omega \geq \omega_{\text{co}} \end{cases} \quad (\text{I.47})$$

où $v_g = d\omega/dk_z$ est la vitesse de groupe du mode considéré et ω_{co} est la fréquence angulaire critique (co pour cut-off en anglais) à partir de laquelle un dipôle ponctuel intégré dans la structure est toujours couplé à ce mode guidé. Le facteur 2 correspond au fait que les modes se propageant vers $z > 0$ et $z < 0$ sont pris en compte.

La densité spectrale étant calculée, il nous faut maintenant trouver le maximum de l'amplitude des fluctuations de point zéro associées à un mode donné. Comme nous l'avons déjà fait dans le cas d'un émetteur dans un matériau massif (voir section 2.2), lorsque l'émetteur se trouve au maximum du champ électrique nous trouvons :

$$E_{\text{zpf}}^{\text{max}} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\text{em}}}{2\varepsilon_0 n^2 L S_{\text{eff}}}} \quad \text{avec} \quad S_{\text{eff}} = \frac{\iint n^2(\vec{r}_\perp) |\vec{E}(\vec{r}_\perp)|^2 d^3\mathbf{r}}{n^2 \max(|\vec{E}(\vec{r}_\perp)|^2)} , \quad (\text{I.48})$$

et n l'indice de réfraction à la position de l'émetteur et S_{eff} la surface effective du mode guidé. Ce dernier décrit la capacité du guide d'onde à confiner la lumière dans le plan transverse à z . On peut le voir comme la section d'un guide imaginaire dans lequel est confiné une distribution uniforme du maximum d'intensité du champ du guide réel, ces deux guides (imaginaire et réel) confinant la même énergie. En reprenant l'équation I.30, pour un émetteur ponctuel dont le dipôle est aligné avec la direction de polarisation de champ électrique, nous trouvons un taux d'émission spontanée maximum :

$$\Gamma_{\text{wg}}^{\text{max}} = \frac{2d_{\text{em}}^2 \omega_{\text{em}}}{\hbar \varepsilon_0 n^2 S_{\text{eff}} |v_g(\omega)|} . \quad (\text{I.49})$$

On peut remarquer que la longueur L introduite artificiellement pour le calcul a disparu. Comme pour le cas de cavité, on définit un facteur de Purcell généralisé aux guides d'onde tel que :

$$F_{P, \text{wg}} = \frac{\Gamma_{\text{wg}}^{\text{max}}}{\Gamma_0} = \frac{3}{4\pi n} \frac{(\lambda_{\text{em}}/n)^2}{S_{\text{eff}}} n_g(\omega) , \quad (\text{I.50})$$

où $n_g(\omega) = c/|v_g(\omega)|$ est l'indice de groupe du mode considéré à la fréquence ω . Comme pour les cavités optiques, ce facteur caractérise la modification du taux d'émission spontanée lorsque la boîte quantique se trouve dans un guide d'onde. D'ailleurs, ces deux facteurs (equ. I.45 et I.50) ont une profonde analogie. On y retrouve le paramètre caractérisant le confinement spatial du mode ($S_{\text{eff}} \leftrightarrow V_{\text{eff}}$) et celui jouant sur la densité de modes accessibles ($n_g/n \leftrightarrow Q$). Pour avoir un fort facteur de Purcell il faut donc minimiser S_{eff} et maximiser l'indice de groupe n_g . Nous allons voir dans la suite de cette section les principales stratégies employés depuis les vingt dernières années pour réaliser des guides d'ondes.

2.4.2 Quelques exemples de guides d'ondes à fort β

Guides d'onde plasmonique. Une première stratégie est l'utilisation de structures à guide d'onde métallique. Le but est de placer un émetteur très proche (quelques nanomètres) d'un nanofil métallique. La lumière est ensuite couplée aux plasmons de surface guidé du nanofil. Ce nanofil peut être très fin avec des diamètres correspondant à une petite fraction de la longueur d'émission de l'émetteur menant alors à un fort confinement transverse du mode ($S_{\text{eff}} \ll (\lambda_{\text{em}}/n)^2$). De plus le couplage peut se faire sur une large bande spectrale. En 2006 Chang *et al.* ont montré que théoriquement il serait possible d'atteindre des facteurs de Purcell supérieurs à 500 sous certaines conditions [106]. C'est en 2007 qu'une première réalisation expérimentale est accomplie en couplant une boîte quantique colloïdale CdSe à un fil plasmonique en argent (figure I.15 a)). Cependant seul une accélération de l'émission spontanée de $F_{p,wg} = 2.5$ ($\beta \sim 0.7$) a été atteinte [107]. Cette stratégie souffre d'une forte limitation liée aux fortes pertes par absorption dans le métal [106,108]. Des solutions ont été proposées comme coupler adiabatiquement un mode de plasmon à un guide diélectrique [106] ou bien de créer un mode de plasmon entre deux nanofils métalliques [109]. Toutefois, ces structures sont encore en cours de développement.

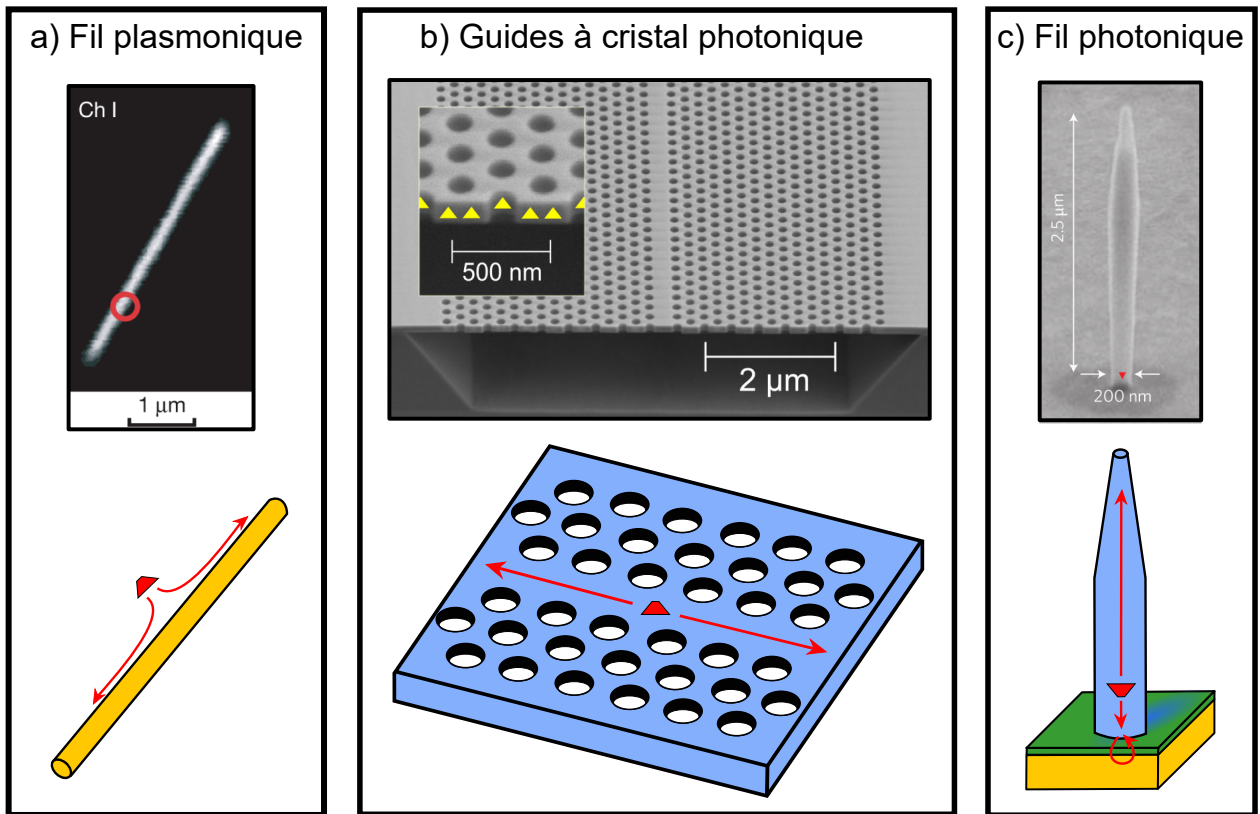


Fig. I.15 – Exemples de guides d’ondes. Chaque panneau montre une image réalisée par microscope électronique à balayage d’une structure réelle et un schéma permettant de mieux comprendre comment les photons émis par la boîte quantique sont guidés par ces structures. a) Guide d’onde à fil plasmonique en argent couplé à une boîte quantique unique CdSe entourée par un cercle rouge sur l’image. Image tirée de [107]. b) Guide d’onde à cristal photonique. La membrane à cristal photonique est suspendue et héberge en son centre une couche de boîtes quantiques (triangles jaunes). L’image est tirée de [110]. c) Guide d’onde à fil photonique GaAs contenant une couche de boîtes InAs. Le fil repose sur un miroir d’or (couche jaune) doté d’une fine couche de SiO₂ (couche verte) permettant une meilleure réflectivité. L’autre extrémité du fil a une forme d’aiguille qui a pour but d’augmenter l’efficacité de collection. Image tirée de [40]. Figure adaptée de [25].

Guides d'onde à cristaux photoniques. Le second type de guide d'onde est celui des guides à cristaux photoniques. Ici l'obtention d'un β proche de 1 se fait d'une part en diminuant la vitesse de groupe du mode guidé (effet de dispersion) mais aussi en inhibant le couplage avec le continuum de mode d'espace libre ($\gamma \ll \Gamma_0$). Ce type de guide a été proposé dans les débuts des années 1990 avec l'intégration d'une ligne de défaut mono-mode au sein d'une structure photonique 3D [111]. Cependant ce sont des membranes (2D) à cristal photonique qui sont majoritairement utilisées car elles sont bien plus simples à fabriquer (voir figure I.15 b)). Le guide est créé en enlevant à la matrice photonique une rangée de trous. Puis un émetteur comme une boîte quantique est placée au centre de la rangée. Ces guides sont capables en théorie de supprimer complètement le couplage aux modes de pertes (ou d'espace libre) pour des dipôles planaires menant alors à $\beta = 1$ [112,113]. Mais ceci est vrai pour une structure sans aucune imperfection de fabrication et pour une seule fréquence. En effet les modes guidés par ces structures présentent une très forte dispersion de groupe, en d'autres termes leur indice de groupe n_g dépend fortement de la fréquence ω . Cette caractéristique peut être utilisée pour accélérer fortement l'émission spontanée dans un mode donné. Effectivement pour une gamme de fréquence plus ou moins restreinte on se retrouve dans le régime dite des vitesses lentes. Ainsi en 2005 un indice de groupe $n_g \sim 300$ a été démontré à l'aide d'une membrane silicium, pouvant mener à un facteur de Purcell $F_p \sim 60$ [114]. Néanmoins un indice de groupe élevé implique en général une plage spectrale restreinte pour l'utilisation du guide et plus grande sensibilité aux imperfections de fabrication qui augmentent alors les pertes optiques en transmission [115,116]. Mais un compromis peut être trouvé en ayant un indice de groupe modéré. Le contrôle de ce paramètre est possible en jouant sur les paramètres géométriques du cristal photonique. Ainsi le groupe de P. Lodahl est parvenu à obtenir un β record de 0.984 avec une membrane GaAs ($\beta > 0.9$ sur plage spectrale de 10 nm) [35]. Ce même groupe avait également démontré $\beta > 0.89$ sur une plage de 20 nm en 2008 avec une structure GaAs plus simple [117].

Guides d'onde à fil photonique diélectrique. La dernière stratégie pour contrôler l'émission spontanée d'un émetteur quantique est de l'intégrer au sein d'un nanofil diélectrique à fort indice de réfraction (voir figure I.15 c)). C'est sur ce type de structure que porte l'ensemble des résultats obtenus durant ce travail de thèse. Ces structures sont constituées d'un cylindre diélectrique pouvant être obtenu en gravant un échantillon planaire ou bien directement par épitaxie. Ces nanofils ont en général un grand indice de réfraction (comme avec le GaAs dont $n = 3.45$). Ces guides supportent plus ou moins de modes guidés selon le diamètre du fil. Nous y reviendrons dans le prochain chapitre plus en détail mais on peut considérer que pour des diamètres $d < (\lambda_{em}/4)$ un seul mode guidé est confiné dans le fil. Ce type de structure est inspiré des travaux des années 1990 portant sur des lasers dont la cavité est formée par un nanofil diélectrique en anneau [34,118]. La grande force des nanofils est d'inhiber fortement l'émission spontanée dans les modes d'espace libre du fait d'un effet d'écrantage diélectrique pour les dipôles perpendiculaires à l'axe du fil. Cet effet sera détaillé dans la prochaine section. Pour rappel avec ce début de chapitre, une boîte quantique crue selon l'axe z peut être modélisée comme l'association de deux dipôles perpendiculaires transverses (plan (x, y)). Dans ces conditions des simulations ont montré que l'émission spontanée peut être couplée efficacement au mode guidé fondamental avec $\beta > 0.95$ pour un fil infini avec une boîte placée sur l'axe du fil [36]. En 2011, une inhibition d'un facteur 16 dans les modes d'espace libre ($\gamma \sim \Gamma_0/16$) a été démontrée dans l'équipe [13]. Cette

inhibition est comparable à celle mesurée dans le cas des guides d'onde à cristal photonique. Mais contrairement aux cristaux photoniques les modes guidés par les fils diélectriques sont très peu dispersifs permettant de maintenir leur efficacité optique sur une large plage spectrale ($\Delta\lambda > 100$ nm a été calculé pour un fil infini [36]). Néanmoins ces structures ne permettent pas une accélération significative de l'émission spontanée. Pour un dipôle transverse sur l'axe du fil et pour un diamètre de fil optimal $\Gamma = 0.9 \times \Gamma_0$ est atteint. Pour augmenter le facteur de Purcell, on peut ajouter un miroir entre le substrat et le nanofil [37,38]. Dans ces conditions, un facteur de Purcell $F_{p,wg} \sim 1.5$ a été mesuré [13]. Nous y reviendrons dans le détail au cours du chapitre II.

Ces structures permettent également une émission très directive et un couplage efficace à un faisceau Gaussien. Ceci est rendu possible en modifiant l'extrémité supérieure du nanofil pour élargir adiabatiquement le faisceau à la sortie de la structure [39]. Une extrémité en forme d'aiguille a été d'abord mise en place en 2010 [40] réalisant une des sources de photons uniques les plus brillantes à cette époque. Une autre extrémité en forme de "trompette" a ensuite été étudiée, se révélant tout aussi performante mais moins sensible aux imperfections de procédé de fabrication. Une transmission à un faisceau Gaussien supérieure à 99% a été démontrée [43,44]. Les structures évoquées ici sont réalisées en gravant un échantillon planaire, on parle de fil "top-down". Cependant il est aussi possible de réaliser des nanofils photoniques uniquement par épitaxie. On parle alors de structure "bottom-up". En 2012 un nanofil InP en aiguille intégrant une boîte unique InAsP a été réalisé mais seul un $\beta = 0.85$ fut atteint [41]. Cette équipe a également démontré une excellente transmission à un faisceau Gaussien [45]. Ces structures sont donc des candidats sérieux dans le domaine de la cryptographie quantique pour coupler efficacement des photons uniques à des fibres optiques [119,120] et plus généralement pour des études d'optique quantique. De plus, une source de photons uniques dans la gamme des longueurs d'ondes télécom a été réalisée avec ce type de fil "bottom-up" crû sur silicium [42], facilitant l'intégration de cette technologie aux techniques de communication actuelles.

2.5 Conclusion

Nous avons vu dans cette section que l'utilisation de guides d'onde pour contrôler l'émission spontanée d'un émetteur quantique est une alternative prometteuse aux micro-cavités optiques. En effet, un guide d'onde offre en général une large bande passante, ce qui permet de réaliser des sources accordables en longueur d'onde, ou de collecter efficacement la lumière issue de plusieurs transitions désaccordées. Parmi les guides offrant un fort β , les guides métalliques offrent potentiellement une très forte accélération de l'émission spontanée, mais souffrent de très fortes pertes par absorption. Les guides à cristal photonique permettent une accélération notable de l'émission spontanée dans le mode guidé sur une plage spectrale raisonnable, et inhibent simultanément l'émission dans les autres modes. Cette stratégie est particulièrement adaptée à la réalisation de circuits photoniques intégrés (même si ces guides d'onde présentent des pertes en transmission significatives, nécessitant le couplage à d'autres guides pour la propagation sur de longues distances). Enfin, les guides à nanofils diélectriques sont quant à eux très large bande. Les antennes optiques qui s'appuient sur cette stratégie ont une émission très directive en champ lointain, qui présente de plus un profil angulaire gaussien. Par contre, cette stratégie s'accompagne d'un faible facteur de Purcell, ce qui complique la réalisation de sources de photons indiscernables.

Le prochain chapitre porte sur les guides d'ondes à fil photonique et plus particulièrement les antennes en "aiguilles", stratégie introduite par notre équipe de recherche à la fin des années 2000. Les différentes études réalisées au cours de ce travail de thèse portent sur ce type de structure [\[40\]](#).

Chapitre II

Antennes à fil photonique

Contents

1	Émission spontanée dans un fil photonique infini	45
1.1	Modes guidés par un cylindre diélectrique	45
1.1.1	Structure des modes guidés	45
1.1.2	Familles de modes et conditions d'existence	48
1.2	Émission spontanée dans les modes guidés	52
1.3	Émission spontanée dans les modes d'espace libre	54
1.3.1	Écrantage diélectrique	54
1.3.2	Modes quasi-guidés	57
1.4	Fraction couplée au mode fondamental : facteur β	58
1.4.1	Modèle de l'émetteur	58
1.4.2	Facteur β	58
2	Antenne à fil photonique	60
2.1	Modèle Fabry-Perot	60
2.2	Conception de l'antenne	63
3	Échantillon étudié durant la thèse	65
3.1	Nanobafrication	65
3.2	Géométrie de l'antenne étudiée au Chapitre III	69
3.2.1	Anisotropie de gravure et ellipticité des fils	69
3.2.2	Géométrie de la couche de passivation — Coupes FIB	71
4	Conclusion	72

Le chapitre précédent nous a permis de poser le cadre général de ce travail de thèse, à savoir l'étude de sources de photons uniques. Nous avons pu voir la grande diversité des stratégies adoptées par la communauté scientifique durant les trente dernières années pour concevoir et réaliser des sources de plus en plus performantes. Ce chapitre va se concentrer sur les antennes à fil photonique qui sont au cœur des études menées dans ce manuscrit. Dans un premier temps, nous étudierons en détail l'émission spontanée d'un émetteur quantique intégré au sein d'un guide à fil photonique infini. En exploitant un modèle Fabry-Perot, qui prend en compte la réflexion sur les facettes du fil, ceci nous permettra dans un deuxième temps de décrire l'émission spontanée dans une structure finie. Cette approche modale offre un cadre très intuitif pour la conception des antennes à fils photoniques. La dernière section de ce chapitre portera sur l'échantillon utilisé lors de ce travail de thèse. Nous détaillerons les procédés de fabrication pour le réaliser et ses principales caractéristiques structurales.

1 Émission spontanée dans un fil photonique infini

Cette première section va nous permettre de définir les modes guidés par un fil diélectrique cylindrique infini. Nous étudierons ensuite l'émission spontanée dans ces modes guidés, puis dans les modes d'espace libre qui se propagent à l'extérieur du fil. Nous verrons que l'émission couplée aux modes guidés peut être décrite analytiquement alors que celle liée aux modes d'espace libre nécessite en général un calcul numérique plus lourd. Néanmoins le couplage aux modes d'espace libre peut être appréhendé analytiquement dans l'approximation électrostatique (limite des fils fins où $d \ll \lambda$). Enfin, nous étudierons la fraction β de l'émission spontanée d'une boîte quantique couplée au mode guidé fondamental.

1.1 Modes guidés par un cylindre diélectrique

On considère ici un fil photonique infiniment long de section circulaire et de diamètre $d = 2a$. Le fil, de fort indice de réfraction n , est plongé dans un milieu d'indice n_c (figure II.1). Dans une telle géométrie, le calcul des modes peut se faire analytiquement dans la base cylindrique (r, θ, z) . Seule l'équation de dispersion (à une inconnue) nécessite une résolution numérique. Nous allons nous intéresser dans cette section aux différents modes guidés accessibles dans le fil selon son diamètre d et la longueur d'onde de travail dans le vide λ .

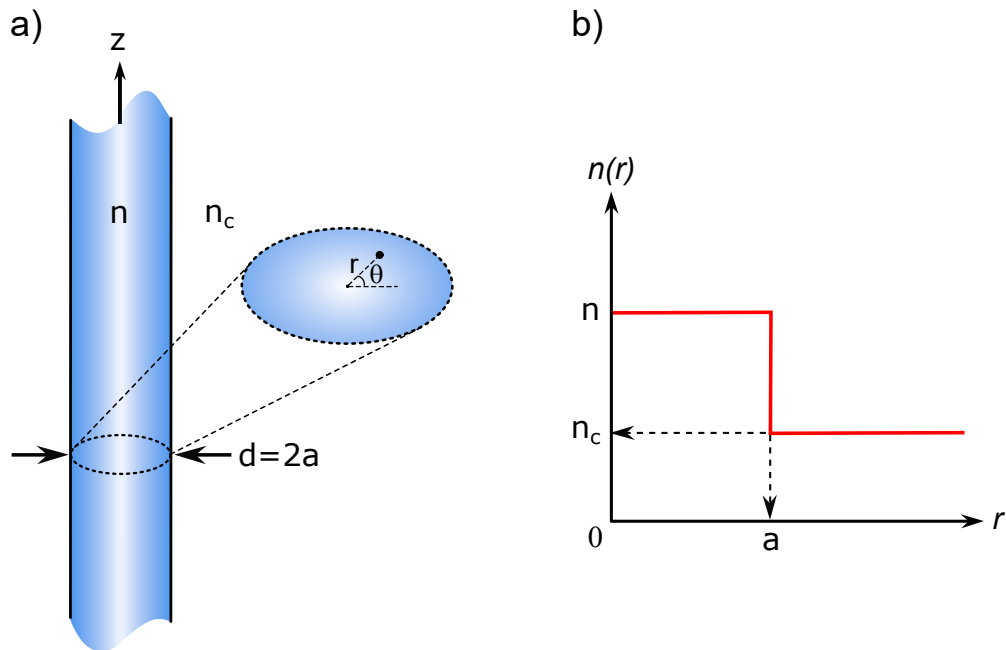


Fig. II.1 – Géométrie du guide d'onde. a) Schéma d'un fil circulaire de diamètre $d = 2a$, d'indice de réfraction n baignant dans un milieu d'indice plus faible n_c . Une description en base cylindrique (r, θ, z) sera adoptée au cours de ce chapitre. b) Indice de réfraction $n(r)$ en fonction de la position radiale r dans ce système.

1.1.1 Structure des modes guidés

Nous allons dans cette section détailler la démarche pour trouver la forme analytique du champ électromagnétique des modes guidés par le fil diélectrique. Ces calculs sont basés

sur le chapitre 3 de la référence [121]. Les composantes du champ électromagnétique seront notées $E_r, E_\theta, E_z, H_r, H_\theta$ et H_z . Ici \vec{H} est lié au champ magnétique \vec{B} par la relation $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ avec μ_0 la perméabilité magnétique du vide (l'aimantation des matériaux considérés est négligeable). Les vecteurs \vec{e}_r et \vec{e}_θ n'étant pas constants, l'équation d'onde impliquant les composantes transverses du champ est complexe. Cependant la composante en z du champ est régie par l'équation de Helmholtz :

$$(\nabla^2 + k^2) \begin{Bmatrix} E_z \\ H_z \end{Bmatrix} = 0, \quad (\text{II.1})$$

où $k = \omega n/c$ et ∇^2 est l'opérateur Laplacien donné par :

$$\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}. \quad (\text{II.2})$$

Dans une structure cylindrique, le problème est traité de la manière suivante : on trouve les composantes E_z et H_z avec l'équation (II.1), puis on exprime E_r, E_θ, H_r et H_θ en fonction de E_z et H_z grâce aux équations de Maxwell. On considère ici un mode guidé se propageant selon z avec une constante de propagation k_z . Le champ électromagnétique s'écrit donc :

$$\begin{bmatrix} \vec{E}(\vec{r}, t) \\ \vec{H}(\vec{r}, t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \vec{E}(r, \theta) \\ \vec{H}(r, \theta) \end{bmatrix} \exp[i(\omega t - k_z z)]. \quad (\text{II.3})$$

Les relations donnant E_r, E_θ, H_r et H_θ en fonction de E_z et H_z sont détaillées dans [121] et il n'est pas nécessaire de les redéfinir pour comprendre ce qui suit. En exploitant la dépendance en z du champ (II.3) on peut réécrire l'équation de Helmholtz (II.1) comme suit :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + (k^2 - k_z^2) \right] \begin{bmatrix} E_z \\ H_z \end{bmatrix} = 0. \quad (\text{II.4})$$

Cette équation différentielle est séparable en r et en θ . En omettant des constantes de normalisation, la solution peut donc s'écrire :

$$\begin{bmatrix} E_z \\ H_z \end{bmatrix} = \Psi(r) \exp(\pm i l \theta), \quad (\text{II.5})$$

où l est un entier positif ou nul qui correspond à l'indice azimutal des modes de propagation. Physiquement, l joue le même rôle que le nombre quantique décrivant la composante selon z du moment orbital angulaire d'un électron dans un potentiel à symétrie cylindrique. Ainsi, le signe $+$ correspond à une rotation du photon dans le sens horaire autour de l'axe z alors que le signe $-$ correspond à une rotation anti-horaire. Dans un fil photonique circulaire, il n'y a pas de préférence sur le sens de rotation. Ces deux états sont donc dégénérés, sauf dans le cas où $l = 0$. En développant l'équation (II.4), $\Psi(r)$ est solution de l'équation différentielle de Bessel d'ordre l :

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \left(k^2 - k_z^2 - \frac{l^2}{r^2} \right) \right] \Psi = 0. \quad (\text{II.6})$$

Les solutions de cette équation font intervenir les fonctions de Bessel et $\Psi(r)$ s'écrira donc de manière générale tel que :

$$\Psi(r) = c_1 J_l(hr) + c_2 Y_l(hr) \quad \text{si } k^2 - k_z^2 > 0, \quad (\text{II.7})$$

$$\Psi(r) = c_3 I_l(qr) + c_4 K_l(qr) \quad \text{si } k^2 - k_z^2 < 0, \quad (\text{II.8})$$

où $h^2 = k^2 - k_z^2$, $q^2 = k_z^2 - k^2$, c_i des constantes, J_l et Y_l les fonctions de Bessel de première et seconde espèce d'ordre l respectivement et enfin I_l et K_l les fonctions de Bessel modifiées de première et seconde espèce d'ordre l respectivement. Dans le cas de la géométrie explicitée sur la figure II.2 a) il faut s'intéresser à deux régions distinctes : l'intérieur du fil ($r < a$) et l'extérieur ($r > a$), avec a le rayon du fil.

A l'extérieur du fil ($r > a$). Pour les modes guidés par le fil, k_z doit impérativement être supérieur à $k_c = n_c \omega / c$ (soit $k_c^2 - k_z^2 < 0$). Ainsi dans la région $r > a$ la solution est donnée par l'équation II.8. De plus pour $r \rightarrow \infty$ le champ évanescent doit tendre vers 0 imposant $c_3 = 0$. Ainsi pour $r > a$ le champ électromagnétique d'un mode guidé s'écrit :

$$\begin{bmatrix} E_z(\vec{r}, t) \\ H_z(\vec{r}, t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C \\ D \end{bmatrix} K_l(qr) \exp(\pm il\theta) \exp[i(\omega t - k_z z)], \quad (\text{II.9})$$

où C et D sont des constantes et q est donné par :

$$q^2 = k_c^2 - k_z^2. \quad (\text{II.10})$$

A l'intérieur du fil ($r < a$). On doit considérer ici le comportement du champ dans la limite $r \rightarrow 0$. En $r = 0$ le champ doit rester fini. Les fonctions Y_l et K_l divergent en 0, ne pouvant alors être prises en compte pour décrire le champ à l'intérieur du fil : $c_2 = c_4 = 0$ (équations II.7 et II.8). A l'interface $r = a$ les composantes tangentielles du champ électromagnétique doivent être continues. Au regard de l'équation II.9 on peut montrer que la fonction I_l ne convient pas. On en déduit alors que k_z est inférieur à $k = n\omega/c$ (soit $k^2 - k_z^2 > 0$). Ainsi pour $r < a$ le champ électromagnétique d'un mode guidé s'écrit :

$$\begin{bmatrix} E_z(\vec{r}, t) \\ H_z(\vec{r}, t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A \\ B \end{bmatrix} J_l(hr) \exp(\pm il\theta) \exp[i(\omega t - k_z z)], \quad (\text{II.11})$$

où A et B sont des constantes et h est donné par :

$$h^2 = k^2 - k_z^2. \quad (\text{II.12})$$

Ces résultats nous permettent de définir une première condition nécessaire pour qu'un mode guidé puisse exister :

$$n_c k_0 < k_z < n k_0 \quad \text{avec} \quad k_0 = \frac{\omega}{c}. \quad (\text{II.13})$$

Avec les relations de Maxwell et les équations II.11 et II.9 nous trouvons la forme analytique de toutes les composantes du champ électromagnétique du mode guidé à l'intérieur et à l'extérieur du fil [121]. Pour un l donné, les conditions aux limites à l'interface entre le guide diélectrique et le milieu l'entourant, imposant la continuité des composantes électriques E_z et E_θ et magnétiques H_z et H_θ , nous mènent à la deuxième condition d'existence du mode :

$$\left(\frac{J'_l(ha)}{haJ_l(ha)} + \frac{K'_l(qa)}{qaK_l(qa)} \right) \left(\frac{n^2 J'_l(ha)}{haJ_l(ha)} + \frac{n_c^2 K'_l(qa)}{qaK_l(qa)} \right) = l^2 \left[\frac{1}{(qa)^2} + \frac{1}{(ha)^2} \right]^2 \left(\frac{k_z}{k_0} \right)^2. \quad (\text{II.14})$$

Pour un l et une fréquence angulaire ω donnés, seules un nombre fini de valeurs propres k_z respectent les conditions des équations II.13 et II.14. Ces valeurs propres sont notées $(k_z)_m$ avec m un entier positif non nul. Ce dernier représente l'indice radial des modes de propagation. $m = 1$ correspond au premier mode satisfaisant la relation de dispersion II.13 et II.14, $m = 2$ est le second, et ainsi de suite. Ainsi la forme générale du champ électromagnétique associé aux modes guidés s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \vec{E}(\vec{r}', t) \\ \vec{H}(\vec{r}', t) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \vec{E}_{l,m}(r) \\ \vec{H}_{l,m}(r) \end{bmatrix} \exp(\pm il\theta) \exp[i(\omega t - k_z z)]. \quad (\text{II.15})$$

1.1.2 Familles de modes et conditions d'existence

Les différentes familles de modes guidés. Les modes guidés se classent en quatre familles. Les premiers sont les modes dit "purs" Transverse Électrique TE ($E_z = 0$) et Transverse Magnétique TM ($H_z = 0$). Ces modes se caractérisent par un indice azimutal nul ($l = 0$) et ne sont pas dégénérés. Ils sont notés TE_{0m} et TM_{0m} .

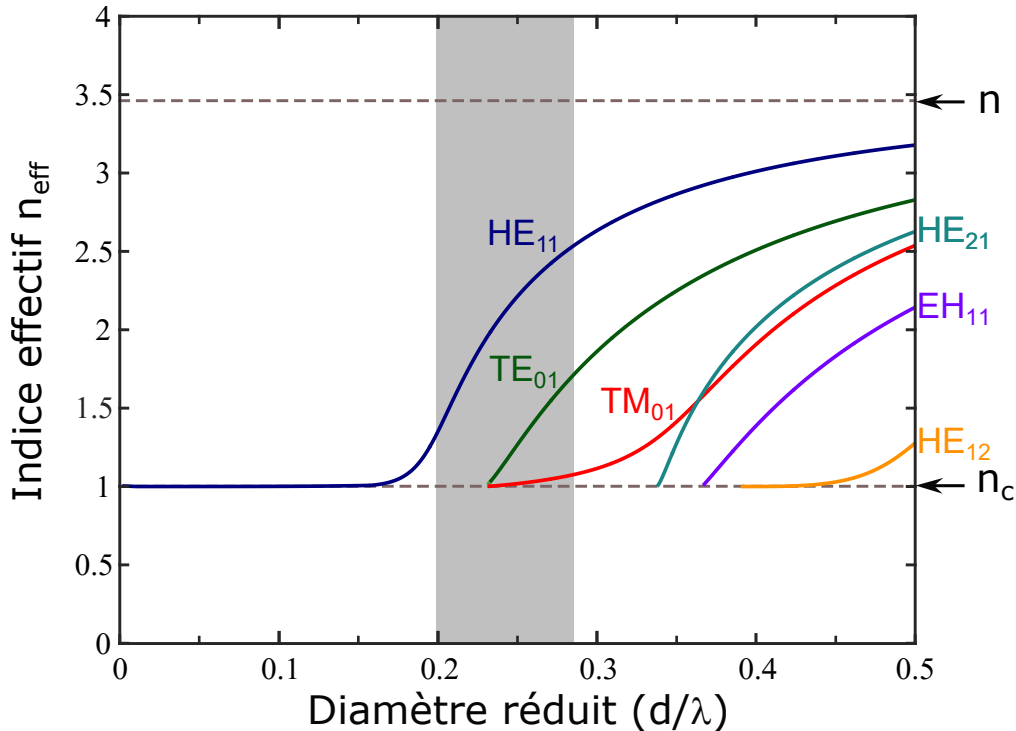


Fig. II.2 – Indice effectif des premiers modes guidés dans un fil photonique. Calcul numérique des indices effectifs des premiers modes de propagation en fonction du diamètre réduit d/λ . Les calculs sont effectués dans le cas d'un fil GaAs ($n = 3.495$) plongé dans l'air ($n_c = 1$). La zone grisée indique les diamètres réduits optimaux pour réaliser des sources de photons uniques avec un fort β (> 0.85) : $0.20 < d/\lambda < 0.28$ [37].

Les deux autres familles de modes ont un indice azimutal $l \geq 1$. Ce ne sont plus désormais des modes “purs” TE ou TM mais des modes “hybrides” (les composantes E_z et H_z sont non nulles). Si la composante électrique E_z est dominante par rapport à la composante magnétique H_z alors le mode est noté EH; et inversement si la composante H_z est majoritaire alors le mode est noté HE. Ces modes sont doublement dégénérés (voir le paragraphe associé à la discussion de l'équation (II.5)).

La figure (II.2) permet de visualiser les premiers modes guidés dans un fil photonique. Nous y présentons l'indice effectif n_{eff} des premiers modes guidés dans un fil photonique en fonction du diamètre réduit d/λ . L'indice effectif est égal à :

$$n_{\text{eff}} = \frac{k_z}{k_0}, \quad (\text{II.16})$$

soit le ratio de la vitesse de la lumière dans le vide sur la vitesse de phase du mode. On remarque sur la figure que $n_{\text{eff}} = n_c = 1$ lorsque le diamètre est égal au diamètre critique d_{critique} d'apparition du mode. Ceci s'explique par le fait que lorsque l'on s'approche du diamètre critique le champ est déconfiné à l'extérieur du fil, c'est-à-dire dans le milieu d'indice n_c . Par le même raisonnement, on comprend que lorsque le mode est très largement confiné dans le fil ($d \gg d_{\text{critique}}$), n_{eff} tend vers n .

Conditions d'existence des modes. La figure II.2 nous indique que les modes guidés apparaissent dans le fil pour des diamètres réduits supérieurs à des valeurs critiques. Seul le mode HE_{11} est toujours présent dans le guide quel que soit le diamètre du fil : c'est le mode fondamental. Les autres modes apparaissent pour des diamètres réduits bien précis. Les valeurs de ces diamètres d'apparition proviennent de l'équation II.14. Cette équation est quadratique en $J'_l(ha)/haJ_l(ha)$ et lorsque nous la résolvons pour cette quantité, nous obtenons deux équations correspondant aux deux racines de II.14. Les valeurs propres issues de ces deux équations se réfèrent aux deux classes de modes EH et HE (voir paragraphe précédent). On a alors pour les modes EH :

$$\frac{J_{l+1}(ha)}{haJ_l(ha)} = \left(\frac{n^2 + n_c^2}{2n^2} \right) \frac{K'_l(qa)}{qaK_l(qa)} + \left(\frac{l}{(ha)^2} - R_l \right), \quad (\text{II.17})$$

et pour les modes HE :

$$\frac{J_{l-1}(ha)}{haJ_l(ha)} = - \left(\frac{n^2 + n_c^2}{2n^2} \right) \frac{K'_l(qa)}{qaK_l(qa)} + \left(\frac{l}{(ha)^2} - R_l \right), \quad (\text{II.18})$$

avec

$$R_l = \left[\left(\frac{n^2 - n_c^2}{2n^2} \right)^2 \left(\frac{K'_l(qa)}{qaK_l(qa)} \right)^2 + \left(\frac{lk_z}{nk_0} \right)^2 \left(\frac{1}{(qa)^2} + \frac{1}{(ha)^2} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (\text{II.19})$$

Les modes TE et TM sont obtenus pour $l = 0$. Dans ce cas particulier les équations II.17 et II.18 deviennent :

$$\frac{J_1(ha)}{haJ_0(ha)} = - \frac{K_1(qa)}{qaK_0(qa)} \quad (\text{TE}) \quad (\text{II.20})$$

$$\frac{J_1(ha)}{haJ_0(ha)} = - \frac{n_c^2 K_1(qa)}{n^2 qaK_0(qa)} \quad (\text{TM}) \quad (\text{II.21})$$

Pour un m donné ces deux équations conduisent aux mêmes diamètres critiques d'apparition tel que :

$$\left(\frac{d}{\lambda}\right)_{0m} = \frac{x_{0m}}{\pi\sqrt{(n^2 - n_c^2)}}, \quad (\text{II.22})$$

où x_{0m} est le m -ième zéro de la fonction de Bessel $J_0(x)$.

Pour $l = 1$ les modes HE_{1m} et EH_{1m} apparaissent pour des diamètres réduits supérieurs à :

$$\left(\frac{d}{\lambda}\right)_{1m} = \frac{x_{0m'}}{\pi\sqrt{(n^2 - n_c^2)}}, \quad (\text{II.23})$$

où $m' = m$ pour les modes EH_{1m} et $m' = m - 1$ pour les modes HE_{1m} ; x_{0m} est le m -ième zéro de la fonction de Bessel $J_1(x)$, en ne comptant pas celui à $x = 0$. Il est important de noter que le mode HE_{11} est toujours présent dans le guide quelque soit le diamètre du fil. C'est le mode guidé fondamental.

Pour $l > 1$ les conditions d'apparition sont données par des formules plus complexes :

$$\left(\frac{d}{\lambda}\right)_{lm}^{\text{EH}} = \frac{x_{lm}}{\pi\sqrt{(n^2 - n_c^2)}} \quad (\text{II.24})$$

$$\left(\frac{d}{\lambda}\right)_{lm}^{\text{HE}} = \frac{z_{lm}}{\pi\sqrt{(n^2 - n_c^2)}}, \quad (\text{II.25})$$

où x_{lm} est le m -ième zéro de la fonction de Bessel $J_l(x)$ et z_{lm} est la m -ième solution de l'équation :

$$zJ_l(z) = (l - 1)\left(1 + \frac{n^2}{n_c^2}\right)J_{l-1}(z). \quad (\text{II.26})$$

Le tableau II.1 donne les valeurs numériques des diamètres réduits critiques des premiers modes guidés qui sont présents sur la figure II.2.

Mode	HE_{11}	TE_{01}	TM_{01}	HE_{21}	EH_{11}	HE_{12}
$\left(\frac{d}{\lambda}\right)_{\text{cri}}$	0	0.229		0.336	0.364	
$\vec{E}_{\perp}(0)$	$\neq \vec{0}$	$\vec{0}$			$\neq \vec{0}$	

Table II.1 – Diamètre réduit critique pour les premiers modes guidés. Ces valeurs sont calculées pour un fil de GaAs entouré d'air ($n = 3.495$ et $n_c = 1$). La dernière ligne indique la valeur du champ électrique transverse $\vec{E}_{\perp} = E_r \vec{e}_r + E_{\theta} \vec{e}_{\theta}$ sur l'axe du fil.

L'ensemble des études présentées dans ce manuscrit porte sur des antennes à fil photonique possédant des diamètres réduits compris entre 0.2 et 0.3. Dans cette gamme, seuls les trois premiers modes guidés HE_{11} , TE_{01} et TM_{01} sont susceptibles d'être présents au sein du guide (tableau II.1). Nous allons les présenter plus en détail dans le paragraphe suivant.

Cartes de champ des premiers modes guidés. Les calculs menés dans cette section nous permettent de connaître l'amplitude du champ électromagnétique pour chaque mode présent dans le fil et pour un diamètre réduit donné. Une simulation, reprenant ces calculs, a été réalisée avec un code disponible au laboratoire. La figure (II.3) présente les cartes bi-dimensionnelles des composantes du champ électrique pour les trois modes HE_{11} , TE_{01} et TM_{01} , pour un diamètre réduit $d/\lambda = 0.3$. Pour chaque mode, le niveau d'intensité est normalisé par $\max(|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_z|^2)^{1/2}$. On peut remarquer sur cette figure que les modes HE_{11} et TE_{01} sont très bien confinés à l'intérieur du fil : la majeure partie du champ électrique se trouve à l'intérieur du fil. Contrairement à ces deux modes, l'amplitude E_r du mode TM_{01} est quasiment nulle à l'intérieur du fil. L'énergie se propage majoritairement dans le milieu entourant le guide. Ceci se comprend très bien avec la figure II.2 où l'on voit que, pour la plage de diamètre considérée, l'indice effectif de ce mode reste très proche de n_c .

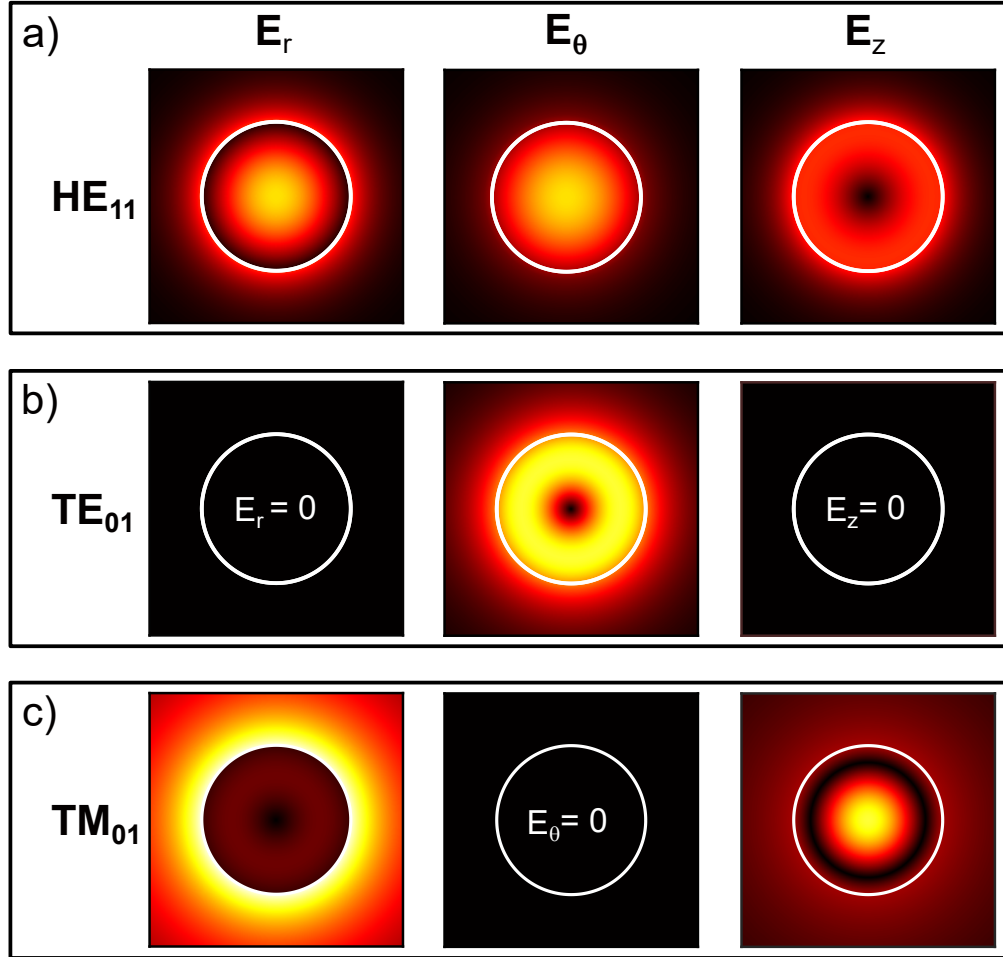


Fig. II.3 – Cartes de l'amplitude des composantes E_r , E_θ et E_z associées aux modes HE_{11} , TE_{01} et TM_{01} . Pour chaque mode, la couleur jaune correspond au maximum d'intensité et le noir au minimum. Pour un mode donné, les composantes sont normalisées par $\max(|E_r|^2 + |E_\theta|^2 + |E_z|^2)^{1/2}$. La circonférence du fil est représentée par un cercle blanc. Le calcul est réalisé pour un fil de diamètre réduit $d/\lambda = 0.3$.

Cette section nous a permis de mieux comprendre la structure des différents modes guidés dans un fil photonique circulaire et infiniment long. Nous allons maintenant voir comment

un dipôle optique linéaire et ponctuel peut se coupler à ces modes optiques.

1.2 Émission spontanée dans les modes guidés

On suppose dans la suite que l'axe z du fil coïncide avec l'axe de croissance de la boîte quantique. Nous avons vu au cours du premier chapitre que les niveaux de valence d'une boîte quantique auto-assemblée sont construits avec des états de trous lourds : on peut par conséquent associer à la transition optique interbande fondamentale de la boîte quantique des composantes de dipôles optiques transverses à z . Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à l'émission d'un dipôle optique linéaire, qui peut prendre une orientation radiale (\vec{d}_r) ou orthoradiale (\vec{d}_θ). Nous verrons en fin de section comment utiliser ces résultats pour modéliser l'émission spontanée d'une boîte quantique. Comme nous considérons uniquement des dipôles transverses, il ne peut pas y avoir de couplage à un mode guidé via sa composante E_z . La composante E_r du mode TM_{01} est très faible à l'intérieur du fil (voir figure (II.3)), du fait de la discontinuité de E_r à l'interface entre deux milieux à fort contraste d'indice. La composante E_θ de ce mode est de plus nulle. Le couplage de l'émission spontanée entre notre émetteur et le mode TM_{01} peut donc être négligé. Les deux seuls modes guidés à prendre en compte dans le cadre de l'émission spontanée (et pour des diamètres $d/\lambda < 0.3$) sont donc le mode HE_{11} (qui est deux fois dégénéré en polarisation), via le couplage avec les composantes E_r et E_θ et le mode TE_{01} via le couplage avec la composante E_θ ($E_r = 0$).

Les antennes à fil photonique offrent des performances optimales pour le contrôle de l'émission spontanée lorsque l'émetteur est placé sur l'axe du fil. Néanmoins, la croissance des boîtes auto-assemblées étant aléatoire dans le plan transverse, il y a une forte probabilité de trouver des boîtes hors axe. Nous allons donc examiner dans la suite les deux cas de figures : émetteur sur l'axe et émetteur hors axe.

Émetteur sur l'axe du fil. Sur l'axe du fil le mode TE_{01} a un champ électrique nul. Pour un fil ayant un diamètre réduit $d/\lambda < 0.364$ (valeur du diamètre critique d'apparition du mode EH_{11} , cf tableau II.1) un émetteur positionné sur l'axe ne pourra se coupler qu'au mode guidé fondamental HE_{11} avec un taux d'émission spontanée $\Gamma_{\text{HE}_{11}}$. Par symétrie, on peut considérer uniquement le cas du dipôle radial. La figure II.4 représente ce taux d'émission spontanée normalisé par Γ_0 , le taux d'émission spontanée dans le GaAs massif. Elle présente également le taux d'émission γ dans les modes d'espace libre qui sera discuté dans la section 1.3. On peut remarquer que $\Gamma_{\text{HE}_{11}}$ est très proche de zéro pour des petits diamètres ($d/\lambda < 0.15$). Dans ce cas le mode est largement déconfiné à l'extérieur du fil, sa surface effective S_{eff} augmentant fortement lorsque d/λ diminue. On observe également que pour des plus grands diamètres ($d/\lambda > 0.25$), $\Gamma_{\text{HE}_{11}}$ diminue. Le mode s'étend de plus en plus dans le fil. Dans ce régime S_{eff} croît comme d^2 . Entre ces deux régimes on atteint un optimum lorsque $d/\lambda \sim \lambda/n$. Plus précisément pour $d/\lambda = 0.235$, un confinement transverse du mode optimal ($S_{\text{eff}} = 0.41 \times (\lambda/n)^2$), associé à une légère augmentation de l'indice de groupe ($n_g = 1.55 \times n$) permet d'atteindre $\Gamma_{\text{HE}_{11}} = 0.9 \times \Gamma_0$. Ceci témoigne d'un bon couplage entre l'émetteur et le mode fondamental. Par contre il n'y a ici pas d'accélération de l'émission spontanée par effet Purcell comme nous l'avons vu dans le cas des micro-cavités optiques.

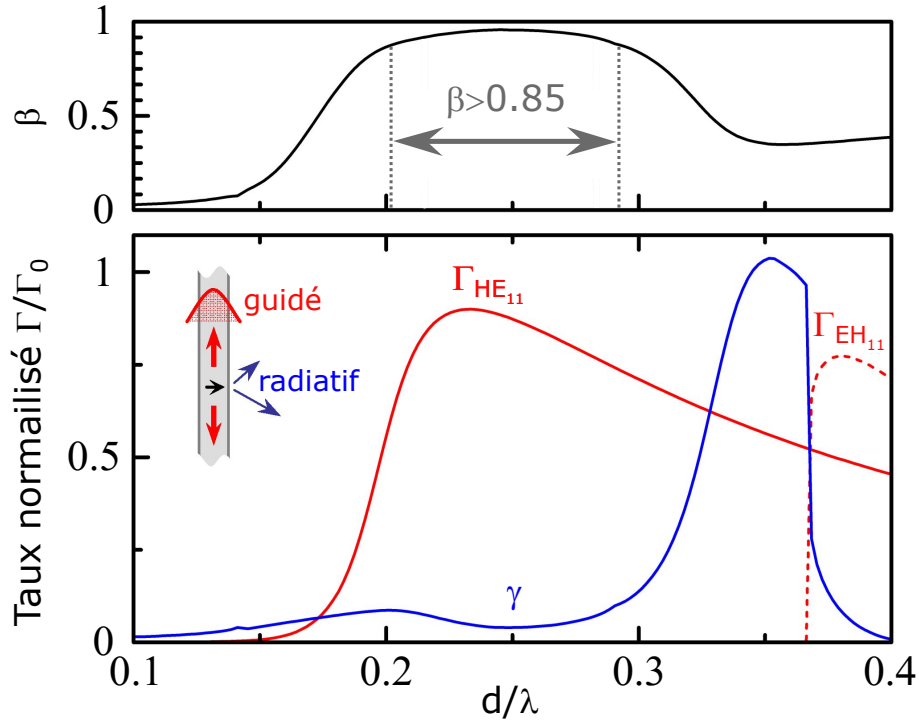


Fig. II.4 – Émission spontanée pour un émetteur sur l’axe. Nous considérons toujours un fil cylindrique de diamètre d infiniment long abritant un dipôle transverse sur son axe (flèche noire au centre du fil). Le graphique du bas représente les taux d’émission spontanée (normalisés par Γ_0) dans les modes guidés HE_{11} (trait plein rouge), EH_{11} (trait pointillé rouge) et dans les modes radiatifs (trait plein bleu) en fonction du diamètre réduit d/λ . Le graphique du haut représente la fraction β d’émission spontanée couplée au mode fondamental HE_{11} en fonction de d/λ . Figure extraite de [122].

Émetteur hors axe. Un émetteur hors axe brise la symétrie cylindrique du problème. Il est alors nécessaire de séparer la contribution des dipôles orientés selon les directions radiale et tangentielle \vec{d}_r et \vec{d}_θ . Le premier se couple uniquement au mode HE_{11} , via sa composante radiale et le second se couple aux modes HE_{11} et TE_{01} via leur composante tangentielle. La figure II.5 illustre l’émission spontanée pour des émetteurs hors axe. a) représente un calcul numérique des taux d’émission spontanée pour fil infini dont $d/\lambda = 0.22$ (avant l’apparition du second mode guidé TE_{01}) en fonction de la position radiale de l’émetteur $2r/d$. Cette figure nous révèle que le couplage au mode fondamental se fait de façon assez similaire entre les deux dipôles. On a de plus un couplage optimal au niveau de l’axe du fil mais qui se dégrade en se rapprochant du bord du fil. Cette diminution illustre directement la baisse d’amplitude du mode lorsqu’on se rapproche des flancs du fil.

La figure II.5 b) représente les taux d’émission spontanée en fonction de d/λ pour un émetteur hors axe positionné à $2r/d = 0.6$, en séparant les taux d’émission pour le dipôle tangential en haut et radial en bas. On y voit la contribution des modes guidés présents pour des fils dont $d/\lambda < 0.4$. Ce calcul est issu des mêmes simulations menées par Andreas D. Osterkryger et Niels Gregersen du DTU Fotonik au Danemark.

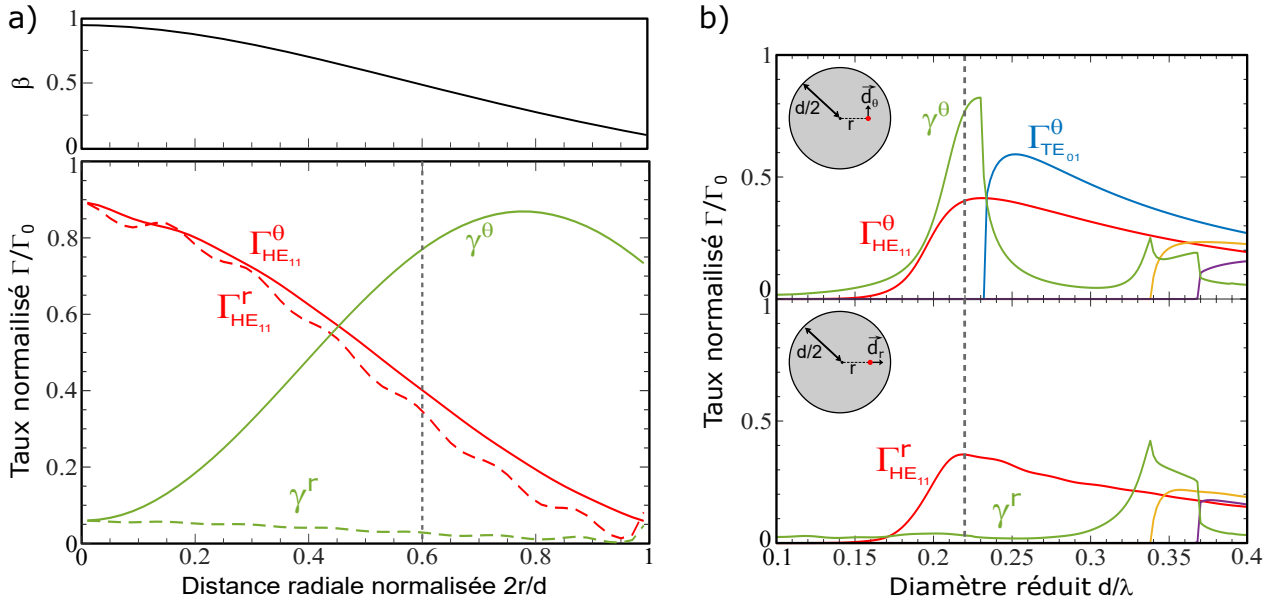


Fig. II.5 – Émission spontanée pour un émetteur hors axe. Nous considérons toujours un fil de GaAs cylindrique de diamètre d infiniment long. a) Graphique du bas : Calcul du taux d'émission pour les deux dipôles \vec{d}_r et \vec{d}_θ pour $d/\lambda = 0.22$ en fonction de leur position radiale normalisée au sein du fil $2r/d$. Ces deux dipôles se couplent de façon similaire au mode fondamental HE_{11} (courbes rouges). Par contre le couplage aux modes radiatifs est fortement affecté par l'orientation du dipôle (courbes vertes). Graphique du haut : Facteur β associé au graphique du bas (voir sec. 1.4 pour le calcul détaillé). b) Calcul du taux d'émission spontanée en fonction du diamètre réduit d/λ pour un émetteur hors axe positionné à $2r/d = 0.6$. Le graphique du haut vaut pour le dipôle tangentiel \vec{d}_θ et celui du bas pour le dipôle radial \vec{d}_r . Les courbes jaune et violette font référence aux modes guidés supérieurs EH_{21} et EH_{11} . Les traits horizontaux en pointillés permettent de faire le lien entre a) et b) pointant sur $2r/d = 0.6$ a) et $d/\lambda = 0.22$ b). Ces calculs sont issus de simulations vectorielles réalisées par Andreas D. Osterkryger (DTU Fotonik au Danemark).

1.3 Émission spontanée dans les modes d'espace libre

L'émission spontanée ne se fait pas uniquement dans les modes guidés par la structure. Comme nous l'avons vu au cours des paragraphes précédents une partie des photons est émise dans les modes d'espace libre (continuum 3D de modes non guidés par le fil) avec un taux γ . Dans cette section, nous allons voir que dans un fil photonique, l'émission dans les modes d'espace libre est fortement inhibée par un phénomène d'écrantage diélectrique.

1.3.1 Écrantage diélectrique

On observe sur la figure II.4 une inhibition marquée de l'émission spontanée dans les modes de d'espace libre. Le taux γ dans ces modes n'excède pas $0.1 \times \Gamma_0$ pour $d/\lambda < 0.3$. Cette inhibition provient d'un effet d'écrantage diélectrique. Le phénomène d'écrantage diélectrique peut être décrit très simplement dans l'approximation électrostatique, c'est-à-dire pour un diamètre de fil très petit par rapport à la longueur d'onde ($d \ll \lambda/n$).

Écrantage diélectrique dans la limite électrostatique. La figure II.6 a) illustre ce mécanisme au sein d'un fil cylindrique traversé par un champ incident perpendiculaire à son axe. Lorsqu'un champ extérieur noté \vec{E}_{inc} est appliqué à un matériau diélectrique il induit une polarisation diélectrique homogène (ceci est vrai dans l'approximation électrostatique), menant à une distribution de charges négatives sur une des surfaces perpendiculaires au champ incident et de charges positives sur la surface opposée. La polarisation induite par le champ électrique incident \vec{E}_{inc} a pour effet de créer un champ électrique dépolarisant \vec{E}_{dep} s'opposant au champ \vec{E}_{inc} et qui est donné par :

$$\vec{E}_{\text{dep}} = -\frac{\left(\frac{n}{n_c}\right)^2 - 1}{\left(\frac{n}{n_c}\right)^2 - 1 + p} \vec{E}_{\text{inc}} , \quad (\text{II.27})$$

où p est un entier positif qui dépend de la géométrie considérée (pour un cylindre $p = 2$).

Pour un contraste d'indice fort ($n/n_c \gg 1$), l'amplitude du champ dépolarisant tend vers celle du champ incident. Le champ total dans le fil tend donc vers 0. En conséquence, les fluctuations de point zéro des modes non guidés par le fil sont amorties [123]. En reprenant la règle d'or de Fermi I.30 nous pouvons calculer le taux d'émission γ pour un dipôle linéaire et transverse :

$$\gamma \propto \left(\frac{p}{\left(\frac{n}{n_c}\right)^2 - 1 + p} \right)^2 \rho_{3D} . \quad (\text{II.28})$$

Comme nous l'avons fait dans le chapitre précédent, nous normalisons ce taux par Γ_0 . Sachant que $\Gamma_0 \propto (n/n_c)\rho_{3D}$ (équation I.41) nous trouvons :

$$\frac{\gamma}{\Gamma_0} = \frac{p^2}{\frac{n}{n_c} \left[\left(\frac{n}{n_c}\right)^2 - 1 + p \right]^2} . \quad (\text{II.29})$$

Dans le cadre de l'approximation électrostatique, ce résultat est valide pour tous les dipôles transverses, même hors axe. On remarque que cet effet est d'autant plus marqué que le contraste d'indice n/n_c est fort. Dans notre cas où l'on travaille avec un fil de GaAs plongé dans le vide, c'est-à-dire $n/n_c = 3.45$, nous avons $\gamma/\Gamma_0 = 0.007$. En ce qui concerne les dipôles longitudinaux alignés avec la dimension infinie, ils ne subissent aucun écrantage et présentent un taux $\gamma/\Gamma_0 = n_c/n$ [124].

Cet effet d'écrantage apparaît également pour des géométries différentes. La figure II.6 b) illustre ce mécanisme dans le cas d'une plaque infinie de faible épaisseur, d'un fil cylindrique et d'une sphère. Seuls les dipôles alignés selon les petites dimensions (flèches rouges en pointillées) subissent un écrantage. Pour ces dipôles, les équations II.27 et II.29 sont valides en utilisant $p = 1$ pour la plaque [125] et $p = 3$ pour la sphère [123]. La figure II.6 c) présente le facteur d'inhibition Γ_0/γ en fonction de n/n_c pour les dipôles écrantés pour ces trois géométries.

Écrantage diélectrique pour des diamètres finis. En réalité, nous ne sommes pas dans l'approximation électrostatique car $d \sim \lambda/n$ lorsque le couplage au mode guidé est optimal. Le taux d'émission γ doit alors être calculé par simulation numérique. Ces calculs sont présentés

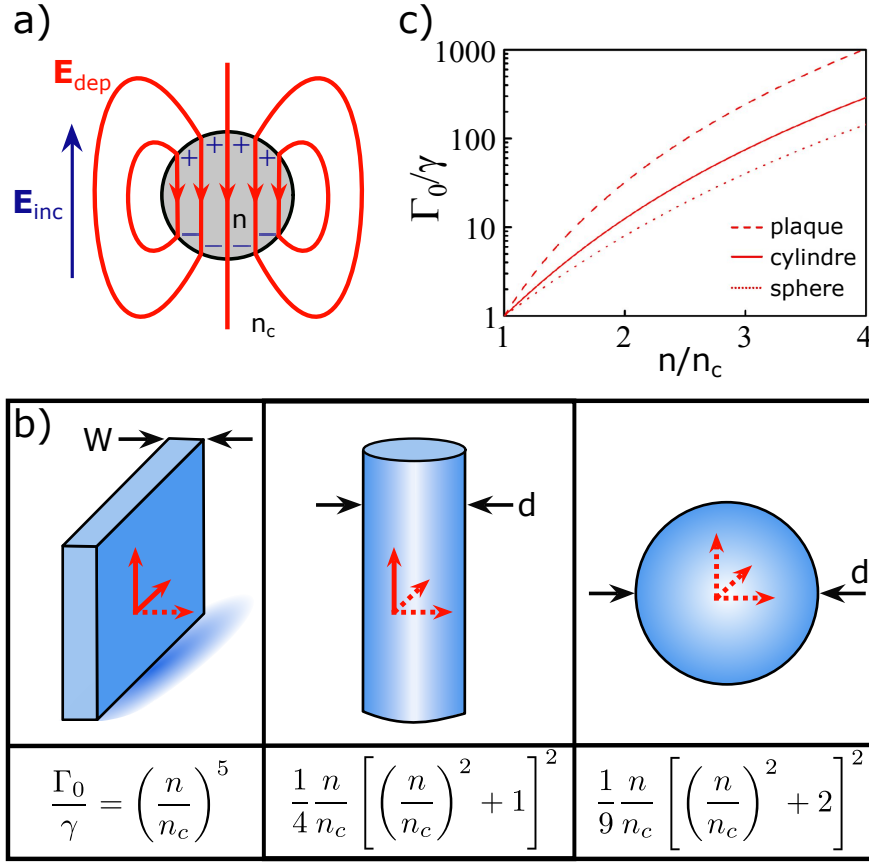


Fig. II.6 – Écrantage diélectrique dans la limite électrostatique. a) Illustration de l'effet d'écrantage au sein d'un fil cylindrique d'indice de réfraction n baignant dans un milieu d'indice n_c . Le cercle gris correspond à la section circulaire du fil. Le champ électrique incident \vec{E}_{inc} dont la direction est perpendiculaire à l'axe du fil a pour effet de créer une distribution de charges sur les bords (signes + et -). Cette distribution crée à son tour un champ électrique dépolarisant \vec{E}_{dep} . b) Écrantage diélectrique dans trois géométries différentes. À gauche une plaque infinie d'épaisseur W ; au centre un fil cylindrique infini de diamètre d et à droite une sphère de diamètre d . Les dipôles sont schématisés par les flèches rouges. Seuls les dipôles polarisés le long des dimensions réduites des structures subissent un écrantage (flèches rouges en pointillées). Les dipôles orientés selon les dimensions infinies ne subissent aucun écrantage (flèches rouges pleines). Pour chaque géométrie le facteur d'inhibition Γ_0/γ pour les dipôles en pointillés est donné en fonction de n/n_c . c) Γ_0/γ en fonction de n/n_c pour les dipôles écrantés pour ces trois géométries. Cette figure est adaptée de la référence [37].

dans [36] et sur les graphiques des sections précédentes. Il existe plusieurs différences avec le cas des fils fins où $d \ll \lambda/n$. Tout d'abord l'inhibition de l'émission dans les modes d'espace libre est globalement réduite. Néanmoins cet effet reste suffisamment présent et un dipôle transverse positionné sur l'axe du fil a un taux d'émission $\gamma/\Gamma_0 < 0.1$ pour un fil de diamètre normalisé $d/\lambda < 0.3$ [37] (figure II.4).

Dans l'approximation électrostatique, l'effet d'écrantage est homogène et isotrope, c'est-à-dire que qu'il reste identique quelque soit la position et l'orientation du dipôle à l'intérieur du fil. La figure II.5 a) nous montre que dans le cas réel ($d/\lambda = 0.22$) γ_r diminue quand on

s'éloigne de l'axe. En effet, sur l'axe $\gamma_r = 0.06 \times \Gamma_0$ et devient quasi nul pour $r = 0.9 \times d/2$, traduisant le caractère non homogène de l'effet d'écrantage pour des fils plus épais. De plus on observe une forte anisotropie de cette effet entre les dipôles radial et tangentiel (figure II.5 b)). Selon les dimensions du fil γ_r et γ_θ peuvent avoir des valeurs complètement différentes.

L'inhibition de l'émission spontanée a été observée expérimentalement en 2011 sur des antennes à fils photoniques [40]. Bleuse et al. ont effectué des mesures de temps de vie sur un ensemble de fils avec différents diamètres [13]. Pour des fils de faibles diamètres $d/\lambda < 0.16$ dans lesquels l'émission dans le mode guidé peut être négligée, ils ont pu mesurer une inhibition de l'émission dans les modes d'espace libre très marquée, avec $\gamma/\Gamma_0 = 1/16$. Ce facteur d'inhibition est comparable à ce qui peut être obtenu avec des structures beaucoup plus complexes, comme les structures à cristaux photoniques 2D et 3D [126,127].

1.3.2 Modes quasi-guidés

La figure II.5 montre que les taux d'émission couplée au modes radiatifs γ_r et γ_θ ont des profils complètement différents. L'anisotropie de l'effet d'écrantage n'est pas la seule responsable de cette différence entre les deux dipôles. Il faut introduire le concept de modes quasi-guidés (leaky modes en anglais) pour le comprendre.

On peut remarquer que quel que soit l'orientation du dipôle, les figures II.4 et II.5 b) montre que γ augmente lorsque d/λ se rapproche du diamètre critique d'apparition des modes guidés supérieurs pour ensuite diminuer rapidement dès que d/λ devient supérieur au diamètre critique. Par exemple, pour un émetteur sur l'axe, la figure II.4 montre que le couplage à ces modes radiatifs augmente significativement pour des fils dont $d/\lambda > 0.3$ avant l'apparition du mode guidé supérieur EH_{11} à $d/\lambda = 0.364$ (voir tableau II.1), pour ensuite diminuer rapidement. La même observation peut être faite pour un émetteur hors axe sur la figure II.5 b). Avant leur apparition stricte, les modes (hors le mode fondamental) sont présents sous la forme de modes quasi-guidés. On peut considérer ces modes comme des modes guidés qui dissipent progressivement de l'énergie en rayonnant vers les modes d'espace libre.

Par exemple le second mode guidé TE_{01} apparaît strictement à partir de $d/\lambda = 0.229$ (cf tableau II.1). Cependant on le considérera comme quasi-guidé dès $d/\lambda = 0.2$. On peut aussi remarquer sur la figure II.5 a) que le taux d'émission γ^θ (en fonction de la position radiale du dipôle) a un profil spatial en forme d'anneau similaire à celui du mode TE_{01} (figure II.3 b)), confirmant le lien fort entre les modes radiatifs et le mode TE_{01} juste avant son apparition stricte. Avant les diamètres critiques, ces modes quasi-guidés sont comptabilisés dans les modes radiatifs, ce qui se traduit par une hausse de γ . Mais l'effet d'écrantage reste présent en ce qui concerne le couplage aux modes radiatifs (hors modes quasi-guidés) car γ chute juste après le diamètre critique où ces modes ne sont plus comptabilisés dans les modes radiatifs. Nous reviendrons sur la notion de mode quasi-guidé au chapitre III. La technique de localisation qui y est présentée utilise un effet d'interférence entre les modes HE_{11} et TE_{01} . Elle fonctionne toujours lorsque TE_{01} est présent sous forme d'un mode quasi-guidé [55].

1.4 Fraction couplée au mode fondamental : facteur β

1.4.1 Modèle de l'émetteur

Pour l'instant, nous avons décrit les processus d'émission spontanée pour deux dipôles linéaires \vec{d}_r et \vec{d}_θ indépendants. Pour modéliser la boîte quantique, on ajoute un ingrédient supplémentaire : un couplage rapide entre ces deux dipôles (ici le terme rapide signifie plus rapide que la dynamique d'émission spontanée). Un tel couplage a pour conséquence d'égaliser les populations associées à ces deux dipôles. Dans ce cas, la dynamique de l'émission spontanée dans un mode M est décrite par un taux moyen $\Gamma_M = \frac{1}{2} (\Gamma_M^r + \Gamma_M^\theta)$, avec Γ_M^r (resp. Γ_M^θ) le taux d'émission spontanée associé au dipôle radial (resp. tangentiel). Dans la suite, nous justifions rapidement l'emploi de ce modèle pour décrire les principaux complexes excitoniques que l'on retrouve dans une boîte quantique.

Pour une boîte chargée (trion positif ou négatif) la recombinaison radiative d'un exciton est modélisée par deux dipôles circulaires et planaires notés $\vec{\sigma}^+$ et $\vec{\sigma}^-$ (figure I.13). Ces deux dipôles circulaires peuvent être décrits, de façon équivalente, par deux dipôles linéaires couplés de manière cohérente, avec une constante de temps très rapide (la période optique). Par symétrie, le choix de la base pour décrire les dipôles linéaires est arbitraire, on peut prendre en particulier la base cylindrique $(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta)$.

En ce qui concerne une boîte sans charge supplémentaire, la recombinaison radiative de l'exciton neutre se comporte comme deux dipôles linéaires orthogonaux et perpendiculaires à l'axe du fil selon les directions \vec{H} et \vec{V} (figure I.12). Ces axes ne coïncident généralement pas avec les axes

$$\vec{e}_r$$

et \vec{e}_θ . La description rigoureuse de l'émission spontanée fait donc intervenir les orientations relatives des axes de la base $(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta)$ et des axes \vec{H} et \vec{V} . Cependant, dans le cas particulier où une relaxation de spin (spin-flip en anglais, voir chapitre IV) couple rapidement (et de manière incohérente) les états $|H\rangle$ et $|V\rangle$, leur populations s'égalisent. Dans ce cas, on peut se placer dans n'importe quelle base pour décrire l'émission spontanée, validant ainsi le modèle proposé ici.

Enfin, nous avons vu que le bi-exciton neutre (deux paires électron-trou piégées au sein de la boîte quantique) est un état singulet qui décline suivant les canaux H et V avec un taux total $\Gamma_{XX} = \Gamma_H + \Gamma_V$. On peut montrer que $\Gamma_{XX} = \Gamma^r + \Gamma^\theta$, pour tout choix de base $(\vec{e}_r, \vec{e}_\theta)$ sans hypothèse supplémentaire.

1.4.2 Facteur β

Comme nous l'avons évoqué lors du premier chapitre, les structures photoniques sont caractérisées par la figure de mérite β (équation I.32) qui permet de caractériser l'efficacité du couplage entre l'émetteur et un mode optique (mode de cavité pour les structures à micro-cavité ou mode guidé pour les guides d'onde). Dans le cas du fil photonique, β caractérise la part de l'émission spontanée couplée au mode guidé fondamental HE_{11} . Il s'écrit :

$$\beta = \frac{\Gamma_{\text{HE}_{11}}}{\Gamma_{\text{HE}_{11}} + \Gamma_g + \gamma}, \quad (\text{II.30})$$

avec Γ_g le taux d'émission spontanée dans les autres modes guidés potentiels. En considérant le modèle de l'émetteur du paragraphe précédent, β est calculé en utilisant les taux d'émission

spontanée moyens $\Gamma_{\text{HE}_{11}} = \frac{1}{2} (\Gamma_{\text{HE}_{11}}^r + \Gamma_{\text{HE}_{11}}^\theta)$, $\Gamma_g = \frac{1}{2} (\Gamma_g^r + \Gamma_g^\theta)$ et $\gamma = \frac{1}{2} (\gamma^r + \gamma^\theta)$.

Cas du fil infini. La figure II.4 montre ce facteur β en fonction de d/λ dans le cas où l'émetteur est positionné sur l'axe. À défaut d'une accélération de l'émission spontanée, la forte inhibition dans les modes d'espace libre permet d'atteindre une émission quasi mono-mode avec $\beta = 0.95$ pour $d/\lambda = 0.25$. On remarque également que $\beta > 0.85$ sur une large plage de diamètre réduit $0.2 < d/\lambda < 0.28$. Une telle tolérance permet de réduire fortement les contraintes de fabrication. En effet pour une émission à $\lambda = 950$ nm, des fils GaAs ayant des diamètres entre 200 nm et 300 nm permettent d'obtenir un très bon couplage au mode HE_{11} . De plus cela indique que ces structures permettent de contrôler l'émission spontanée sur une large bande spectrale, ce qui est un grand avantage compte-tenu de la dispersion spectrale des boîtes quantiques. Cela nous permet aussi de pouvoir collecter efficacement plusieurs transitions d'une même boîte (exciton et bi-exciton), ce qui est crucial pour pouvoir réaliser des sources de paires de photons intriqués [48,49].

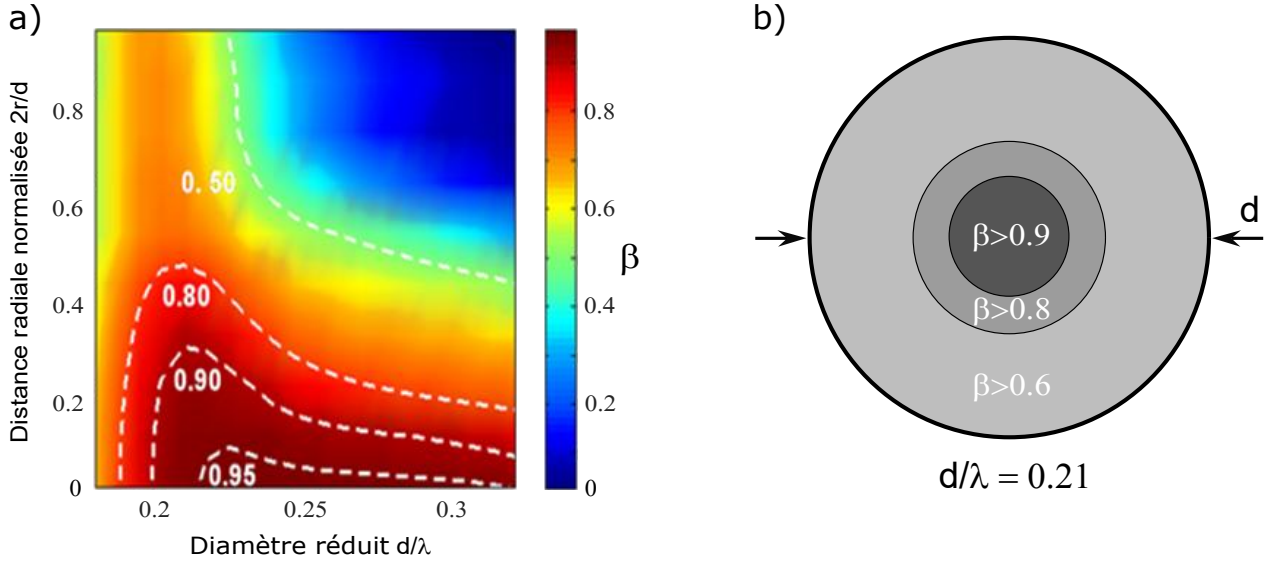


Fig. II.7 – Facteur β pour un émetteur isotrope dans un fil semi-infini GaAs. Calculs issus de simulations menées pour un fil GaAs semi-infini reposant sur un miroir d'or. a) Facteur β en fonction de la position radiale de l'émetteur et du diamètre réduit du fil. b) Représentation de la section circulaire d'un fil dont $d/\lambda \sim 0.21$ permettant de voir la correspondance entre β et la distribution spatiale des boîtes quantiques dans le fil. Figure adaptée de [128].

Pour un émetteur hors axe, le facteur β se dégrade rapidement. Il est tracé sur la figure II.5 a) (graphique du haut) en fonction de la position radiale de l'émetteur à l'intérieur du fil. De manière générale, le couplage au mode guidé fondamental diminue lorsqu'on se rapproche des bords du fil. De plus, pour des fils avec $0.2 < d/\lambda < 0.3$, plus le dipôle se rapproche du bord, plus il sera couplé au mode guidé (ou quasi-guidé) TE_{01} . Ainsi β se rapproche de zéro pour un émetteur très proche du bord.

Fil semi-infini reposant sur un miroir. Ce problème peut être réduit dans le cas d'un fil GaAs semi-infini, l'extrémité inférieure reposant sur un miroir. Ce dernier permet d'accélérer

l'émission spontanée dans le mode fondamental par un facteur proche de 2, de collecter plus efficacement la lumière et aussi d'accélérer l'émission spontanée dans le mode fondamental. Nous verrons dans la suite de ce chapitre que c'est la stratégie qui est adoptée pour réaliser des antennes à fil photonique (voir section 2.1). Le groupe de Philippe Lalanne a effectué des simulations numériques pour plusieurs positions radiales et plusieurs diamètres de fil dans ce cas de figure. Le résultat de ces calculs est visible sur la figure II.7 a) qui représente le facteur β en fonction de la position radiale de l'émetteur $2r/d$ et de d/λ . Pour un fil avec $d/\lambda \sim 0.21$ et en considérant une distribution spatiale homogène des boîtes quantiques dans le fil, une boîte sur 15 aura un $\beta > 0.9$, une sur 5 un $\beta > 0.8$ et le reste un $\beta > 0.6$ (figure II.7 b)). Ceci nous indique que la position aléatoire des boîtes permet de préserver un rendement de fabrication raisonnable.

Nous allons voir dans la prochaine section comment exploiter ces nanofils pour réaliser une antenne optique qui optimise la collection des photons par des optiques en espace libre.

2 Antenne à fil photonique

Nous avons pu voir que l'intégration d'une boîte quantique dans un fil diélectrique infini permet d'obtenir une émission mono-mode efficace (fort β) sur une large bande spectrale. Néanmoins un fil réel est borné par deux facettes inférieure et supérieure, et présente une longueur finie. La collection des photons émis par de telles structures dépend alors de la géométrie de ces deux extrémités. Nous considérons un fil vertical reposant sur un substrat planaire. En considérant un émetteur intégré au sein du fil, les photons émis ont autant de chance de se coupler aux modes se propageant vers le haut et vers le bas. La collection se faisant via la facette supérieure, la moitié des photons sont perdus. La solution est d'insérer un miroir sous le fil avec une forte réflectivité modale pour le mode fondamental HE_{11} . Le second problème se trouve au niveau de l'extrémité supérieure. Dans la gamme de diamètre considérée, le mode HE_{11} est fortement confiné : l'extension latérale typique du mode ($\sim \lambda/n$) est petite devant la longueur d'onde dans le vide (λ). En conséquence, les photons quittent le fil avec des angles très grands, limitant alors la collection de la lumière dans le champ lointain [129]. La solution pour obtenir une émission directive est de déconfiner progressivement le mode à l'extérieur du fil en réduisant progressivement le diamètre du fil [130]. L'extrémité supérieure présente alors une forme de cône (ou d'aiguille) [39]. Ces deux solutions seront détaillées au cours de cette section. Nous commencerons par introduire le modèle de Fabry-Perot développé dans [36], nous permettant de modéliser simplement la structure, et d'obtenir le taux d'émission spontanée ainsi que l'efficacité de collection des photons.

2.1 Modèle Fabry-Perot

La figure II.8 permet d'illustrer le modèle Fabry-Perot qui a été initialement introduit par l'équipe de P. Lalanne pour modéliser ces structures. Un dipôle optique linéaire est placé sur l'axe d'un fil. Il se trouve à une distance h_b de la facette inférieure et h_t de la facette supérieure. Ce modèle fait l'hypothèse que les réflexions des deux facettes du fil n'impactent que le couplage au mode guidé considéré. Le couplage aux modes radiatifs se fait de la même manière que dans le cas du fil infini. Nous n'avons besoin que de la position de l'émetteur et des réflectivités $r_b = |r_b|e^{i\Phi_b}$ et $r_t = |r_t|e^{i\Phi_t}$ des facettes inférieure et supérieure pour pouvoir

déterminer le taux d'émission spontanée de l'émetteur. Ce modèle simple donne des résultats en bon accord avec des calculs vectoriels complets.

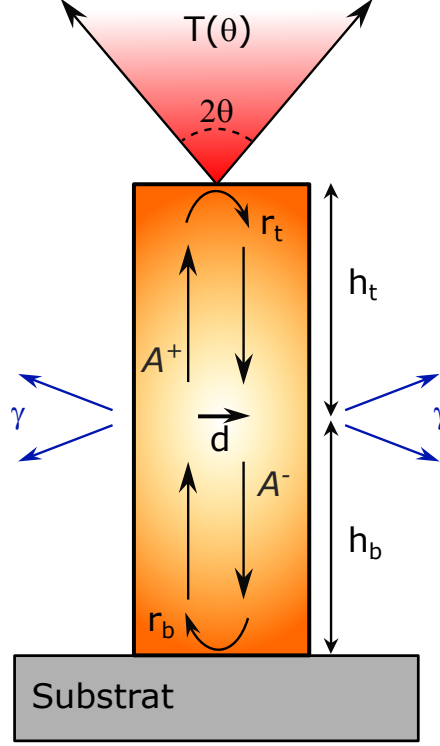


Fig. II.8 – Schéma illustrant le modèle Fabry-Perot. Un dipôle linéaire \vec{d} est placé sur l'axe du fil. A^+ et A^- sont les amplitudes du mode guidé HE_{11} se propageant vers le haut et vers le bas, respectivement. r_t et r_b correspondent aux réflectivités des facettes supérieure et inférieure pour le mode guidé considéré. Le taux d'émission dans les modes radiatifs est noté γ . L'intensité transmise en champ lointain $T(\theta)$ représente la fraction de l'énergie propagée par le mode HE_{11} sortant du fil qui se trouve dans un cône défini par l'angle θ . Figure adaptée de [36].

Taux d'émission spontanée. Nous verrons dans la prochaine section que l'extrémité conique de l'antenne photonique annule la réflectivité de la facette supérieure ($r_t = 0$). Seule la facette inférieure joue le rôle de miroir et réfléchit les photons émis vers le bas. On note A^+ et A^- les amplitudes du mode guidé HE_{11} se propageant vers le haut et vers le bas respectivement. Elles sont données par :

$$A^+ = A_s (1 + |r_b| e^{i(\Phi + \Phi_b)}) \quad (\text{II.31})$$

$$A^- = A_s, \quad (\text{II.32})$$

où $\Phi = \pi n_{\text{eff}} h_b / \lambda$, n_{eff} l'indice effectif du mode considéré et λ la longueur d'onde dans le vide. Φ représente la phase accumulée lors de la propagation. A_s est directement lié au taux d'émission spontanée couplée au mode fondamental dans un fil infini $A_s = \sqrt{\Gamma_{HE_{11}}^\infty} / 2$. Pour que le taux d'émission spontanée soit maximal il faut des interférences constructives entre les photons réfléchis et ceux se propageant directement vers le haut. En d'autres termes il faut

que la phase du faisceau réfléchi soit égale à $2\pi m$, avec m en entier strictement positif. Cette condition définit une série de positions verticales optimales h_m pour l'émetteur telles que :

$$\frac{2n_{\text{eff}}h_m}{\lambda} + \frac{\Phi_b}{2\pi} = m . \quad (\text{II.33})$$

$m = 1$ correspond au nœud le plus proche du miroir inférieur. Pour un émetteur placé à n'importe quelle hauteur h_m , nous trouvons un taux d'émission spontanée couplé au mode HE_{11} :

$$\Gamma_{\text{HE}_{11}} = \Gamma_{\text{HE}_{11}}^{\infty} (1 + |r_b|) . \quad (\text{II.34})$$

L'ajout d'un miroir parfait ($|r_b| = 1$) permettrait alors de doubler le taux d'émission spontanée couplé au mode fondamental. Sachant que $\Gamma_{\text{HE}_{11}}^{\infty}/\Gamma_0 = 0.9$ pour $d/\lambda = 0.23$ (figure II.4), une accélération par effet Purcell d'un facteur $F_p^{\text{wgs}} = 1.8$ pourrait théoriquement être atteinte.

Efficacité de collection. Outre le facteur β , une autre figure de mérite plus globale est généralement utilisée pour caractériser les sources de photons à guides d'onde. C'est l'efficacité de collection $\eta(\theta)$ définie par la fraction des photons émis par l'émetteur qui est collectée en champ lointain dans un cône d'ouverture numérique $\text{NA} = \sin \theta$ (figure II.8). Ce facteur est défini tel que $\eta(\theta) = T(\theta)|A^+|^2/(\Gamma_{\text{HE}_{11}} + \gamma)$, avec $T(\theta)$ la transmission de la facette supérieure dans ce même cône. En utilisant les équations précédentes nous trouvons alors :

$$\eta(\theta) = \frac{1}{2}\beta^{\infty} \frac{(1 + |r_b|)^2}{1 + \beta^{\infty}|r_b|} T(\theta) . \quad (\text{II.35})$$

β^{∞} correspond à la fraction de l'émission couplée au mode fondamental dans le cas d'un fil infini. Dans le cas optimal d'un miroir parfait $|r_b| = 1$ et d'une transmission $T(\theta) = 1$, $\eta(\theta)$ ne dépend que du facteur β^{∞} . Pour un fil dont $d/\lambda \sim 0.25$ nous avons montré que $\beta^{\infty} = 0.95$ (figure II.4) menant à une valeur maximale $\eta(\theta) = 0.97$.

Efficacité externe. Pour caractériser la brillance d'une source de photons uniques, on utilise souvent l'efficacité externe $\eta_{\text{ext}}(\theta)$, définie comme la probabilité d'émettre un photon dans une lentille d'ouverture $\text{NA} = \sin \theta$ après une impulsion d'excitation. Considérant une transition excitonique neutre X, $\eta_{\text{ext}}(\theta)$ peut se décomposer de la manière suivante :

$$\eta_{\text{ext}}(\theta) = (p_{X \geq 1} \cdot \eta_{\text{rad}} \cdot f_0) \eta(\theta) , \quad (\text{II.36})$$

où le terme entre parenthèses est lié à l'émetteur et $\eta(\theta)$ est lié à l'efficacité d'extraction du fil. $p_{X \geq 1}$ est la probabilité d'injecter au moins un exciton dans la boîte quantique par impulsion d'excitation. Pour une puissance d'excitation assez élevée $p_{X \geq 1} \sim 1$. η_{rad} est l'efficacité quantique de la boîte : c'est la probabilité que la boîte quantique se désexcite via l'émission d'un photon, plutôt que via un mécanisme de recombinaison non radiatif. Pour des boîtes auto-assemblées InAs il a été montré que les mécanismes de recombinaison non-radiatifs pouvaient être négligés pour des émetteurs suffisamment loin des bords du fil (50 nm de distance) menant à $\eta_{\text{rad}} \sim 0.97$ [12]. Ceci a été confirmé par les mesures de temps de vie menées par J. Bleuse dans [13]. f_0 représente la fraction temporelle pendant laquelle la boîte reste dans

un état de charge neutre. Pour un environnement électrostatique parfaitement contrôlé autour de l'émetteur $f_0 = 1$. Dans ces conditions d'un émetteur quasi-parfait nous avons alors $\eta_{\text{ext}}(\theta) \sim \eta(\theta)$. Toutefois, nos antennes ne bénéficient pas encore de ce contrôle. On parvient toujours à trouver des émetteurs pour lesquels f_0 approche 1, mais une fraction significative n'a pas un état de charge stable. C'est en pratique la principale source de déviation entre l'efficacité externe et efficacité de collection.

Nous allons voir dans la suite quelles solutions technologiques ont été adoptées pour réaliser le miroir inférieur et l'extrémité supérieure.

2.2 Conception de l'antenne

La figure II.9 a) schématise les antennes à fil photonique que j'ai utilisées au cours de mon travail de thèse. Ces antennes reposent sur un miroir métallique à forte réflectivité et possèdent une extrémité supérieure en forme de cône inversé permettant une émission directive en champ lointain.

Miroir inférieur. Comme nous l'avons vu au cours du paragraphe précédent, il est important d'intégrer un miroir entre le fil et le substrat avec une réflectivité associée au mode d'intérêt (mode fondamental HE_{11}) la plus proche de 1. Il est aussi crucial que cette réflectivité reste élevée sur une large plage spectrale pour préserver la bande passante de l'antenne. La conception d'un tel miroir a été discutée en détail d'un point de vue théorique dans [36,38]. Plusieurs stratégies ont été envisagées, comme l'utilisation de miroirs de Bragg diélectriques. Un miroir de Bragg planaire localisé sous le fil est inefficace car la lumière quitte le fil avec des angles bien supérieurs à l'angle d'acceptance du miroir (20° pour un miroir GaAs/AlAs). Une solution est d'intégrer directement ces miroirs de Bragg au sein du fil. C'est ce qui a été proposé par Chen et al. [131] dans le cadre des nanolasers, montrant qu'une réflectivité supérieure à 0.9 pouvait être atteinte. Cependant cette solution n'est adaptée que pour des diamètres de fil supérieurs à $d/\lambda > 0.3$. Pour les diamètres inférieurs, le contraste d'indice effectif diminue, ce qui implique un nombre énorme de périodes pour obtenir une réflectivité significative, représentant un sérieux défi de fabrication. De plus, le contraste d'indice effectif limité limite aussi l'étendue spectrale d'utilisation du miroir [132].

La solution qui a été adoptée est l'utilisation d'un miroir métallique d'or entre le substrat et le fil. Un tel miroir a l'avantage d'être facile à intégrer et d'offrir une large bande spectrale d'utilisation dans le domaine de l'infrarouge. La figure II.9 c) représente un calcul de la réflectivité modale associée au mode HE_{11} (coefficient $|r_b|^2$) d'une couche d'or de 250 nm d'épaisseur en fonction du diamètre réduit d/λ . Ce graphique nous apprend que $|r_b|^2$ chute autour de zéro pour $d/\lambda \sim 0.2$. Nous suspectons que ceci est principalement dû à un couplage à des modes surfaciques de plasmons [38]. L'ajout d'une fine couche diélectrique (ici SiO_2) permet fort heureusement de restaurer une réflectivité élevée. Pour une couche d'épaisseur 9 ou 11 nm, $|r_b|^2 > 0.9$ sur toute la gamme de diamètres d'intérêt. En utilisant l'équation II.34, une accélération par effet Purcell $F_p^{\text{wg}} = 1.7$ pourrait théoriquement être atteinte avec cette structure. Notre équipe a démontré expérimentalement un facteur $F_p^{\text{wg}} = 1.55$ pour une boîte intégrée dans une telle antenne [13]. Le faible écart entre la mesure expérimentale et la valeur théorique provient vraisemblablement du fait que la boîte n'est pas exactement localisée sur l'axe du fil.

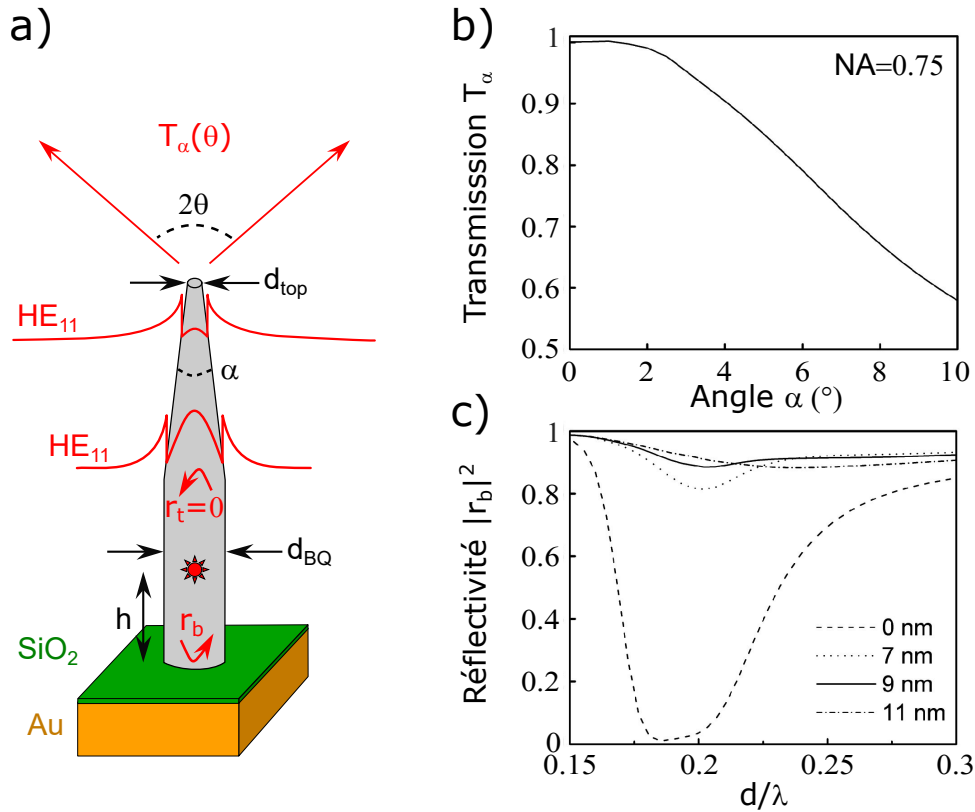


Fig. II.9 – Antennes à fil photonique. a) Schéma d'une antenne photonique reposant sur un miroir Au-SiO₂. L'extrémité supérieure est en forme d'aiguille avec une ouverture totale d'angle α et permet d'étendre le mode HE₁₁ à l'extérieur du fil, pour obtenir une émission directive en champ lointain. b) Transmission de l'extrémité supérieure T_α dans un cône d'ouverture numérique $NA = \sin \theta = 0.75$ en fonction de l'angle α . Pour $\alpha < 10^\circ$ la réflectivité r_t peut être négligée. c) Réflectivité modale associée au mode HE₁₁ (coefficient $|r_b|^2$) d'une couche d'or de 250 nm d'épaisseur associée à une fine couche de SiO₂ pour différentes épaisseurs (0, 7, 9 et 11 nm) en fonction du diamètre réduit du fil d/λ . Figure adaptée de [37].

Extrémité supérieure : adaptateur de mode. Le but d'une ingénierie de l'extrémité supérieure est double. Elle doit supprimer la réflectivité modale associée au mode HE₁₁ et permettre une bonne collection en champ lointain par un objectif de microscope commercial. Ces deux objectifs ont été atteints en réduisant progressivement le diamètre du fil de la partie supérieure du fil. L'extrémité a alors une forme d'aiguille avec un angle d'ouverture α (voir figure II.9 a)). La réduction progressive du diamètre diminue l'indice effectif n_{eff} du mode HE₁₁ (voir figure II.2). Le mode est donc de moins en moins confiné par le fil jusqu'à être complètement déconfiné dans l'air entourant le fil. Cette expansion permet de supprimer la réflexion de la facette supérieure ($r_t = 0$) et d'obtenir une émission directive. Il a été montré qu'à partir d'un diamètre $d/\lambda = 0.15$ le mode est totalement déconfiné dans l'air [39]. Le cône de l'extrémité peut donc être tronqué sans impacter sa transmission. L'angle α doit être suffisamment petit pour obtenir une transformation adiabatique du mode le long du fil. La figure II.9 b) représente la transmission $T(\theta)$ de la facette supérieure en fonction de l'angle

α pour $\text{NA} = \sin \theta = 0.75$. Ce graphique est issu de simulations présentées dans [39], pour un fil avec $d_{\text{QD}}/\lambda = 0.23$ et $d_{\text{top}}/\lambda = 0.15$. T_α reste très proche de 1 pour $\alpha < 2^\circ$. Pour des angles supérieurs la transmission décroît rapidement, ce qui traduit une transformation non adiabatique du mode.

Antennes “top-down” et “bottom-up”. Les antennes photoniques utilisées durant cette thèse sont réalisées par une stratégie “top-down” en gravant un échantillon planaire (voir section 3). Cette stratégie ne permet pas d’atteindre de très faibles angles α . Nous verrons qu’un angle $\alpha \sim 5^\circ$ a été atteint, limitant l’efficacité externe de ces structures à $\eta_{\text{ext}} = 0.72$ [40]. Cependant il est possible d’atteindre des angles faibles avec une approche “bottom-up” en faisant croître directement l’antenne par épitaxie [133,134]. En 2012, M. E. Reimer et al. ont réalisé une antenne InP intégrant une unique boîte quantique InAsP, l’angle de l’antenne ne faisant que $\alpha = 2^\circ$, assurant une collection $T_\alpha = 0.98$ [41]. Cependant l’intégration d’un miroir inférieur avec une telle stratégie est pour l’instant mal contrôlée et limite alors l’efficacité de la structure à $\eta_{\text{ext}} = 0.42$. Une autre stratégie permettant d’obtenir une émission directive est d’augmenter progressivement le diamètre du fil donnant lieu à une forme de “trompette” avec un angle d’ouverture α' [135]. Dans ce cas le mode HE_{11} est de plus en plus étendu à l’intérieur du fil. Cette stratégie permet d’obtenir une excellente transmission $T > 0.99$ pour un angle $\alpha' < 10^\circ$ [43] traduisant une transformation adiabatique quasi-parfaite du mode HE_{11} . En ajoutant une couche anti-reflet sur la facette supérieure pour éliminer la réflexion à l’interface GaAs/air, une efficacité $\eta_{\text{ext}} = 0.75$ a été atteinte avec une telle structure. Mon travail de thèse aurait dû porter sur l’étude de trompettes photoniques mais suite à divers incidents (destruction accidentelle d’un échantillon prêté à une autre équipe et problèmes lourds sur le bâti de la MBE empêchant la réalisation de nouveaux échantillons) j’ai utilisé un échantillon “aiguille” historique [40]. La prochaine section va détailler les procédés de fabrication de ces antennes photoniques.

3 Échantillon étudié durant la thèse

Les antennes à fil photonique utilisées lors de ce travail de thèse ont été développées et fabriquées durant la thèse de Nitin Singh Malik entre 2008 et 2009 au sein de notre laboratoire. Dans cette section, nous décrivons le procédé de fabrication, puis nous détaillons la géométrie des structures étudiées durant la thèse.

3.1 Nanofabrication

Le procédé de fabrication peut se diviser en quatre étapes. Les antennes sont définies avec une approche “top-down”, c’est-à-dire en gravant un échantillon planaire crû par épitaxie. Il n’est pas possible d’obtenir des croissances de semiconducteurs de bonne qualité sur de l’or. Le miroir planaire Au-SiO₂ doit donc être déposé après la croissance. Puis l’échantillon planaire est collé du côté miroir sur un substrat GaAs. C’est l’étape du “flip-chip”. La dernière étape est celle de la gravure définissant les structures finales.

Croissance MBE. La première étape de fabrication est la croissance de plusieurs couches de matériaux semiconducteurs en épitaxie par jet moléculaire. Cette technique, mise au point

dans les années 1970, permet de déposer des matériaux sur un substrat préalablement choisi avec une vitesse de croissance d'environ une monocouche (MC) par seconde (c'est-à-dire $1\mu\text{m}/\text{h}$). C'est un procédé assez lent comparé aux autres procédés de croissance mais il permet d'obtenir une excellente qualité et un contrôle en temps réel du nombre de couches atomiques déposées. Le substrat est placé dans une chambre sous ultra-vide (de l'ordre de 10^{-12} mbar). Ce vide est effectué par une pompe ionique permanente, assisté d'un pompage cryogénique pendant la croissance. Les matériaux de croissance sont sublimés dans des cellules séparées puis, par transport balistique, vont se déposer sur le substrat. En effet, le vide poussé à l'intérieur de la machine permet d'avoir un libre parcours moyen plus grand que les dimensions de la chambre d'épitaxie.

La composition des couches déposées durant la première étape est présentée dans la figure II.10 a). La croissance commence à partir d'un cristal monocristallin et planaire de GaAs(100). La première couche épitaxiée est une couche sacrificielle de 500 nm composée de $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}$. Ce matériau possède un paramètre de maille très proche de celui de GaAs et peut donc facilement croître sur le substrat. La deuxième couche est composée de GaAs et possède une épaisseur de $2.5\mu\text{m}$. Cette couche servira à réaliser le guide d'onde final et détermine donc la hauteur des futures structures. Une fois cette couche déposée, on procède à la fabrication des BQs en bombardant l'échantillon par des atomes d'indium et d'arsenic.

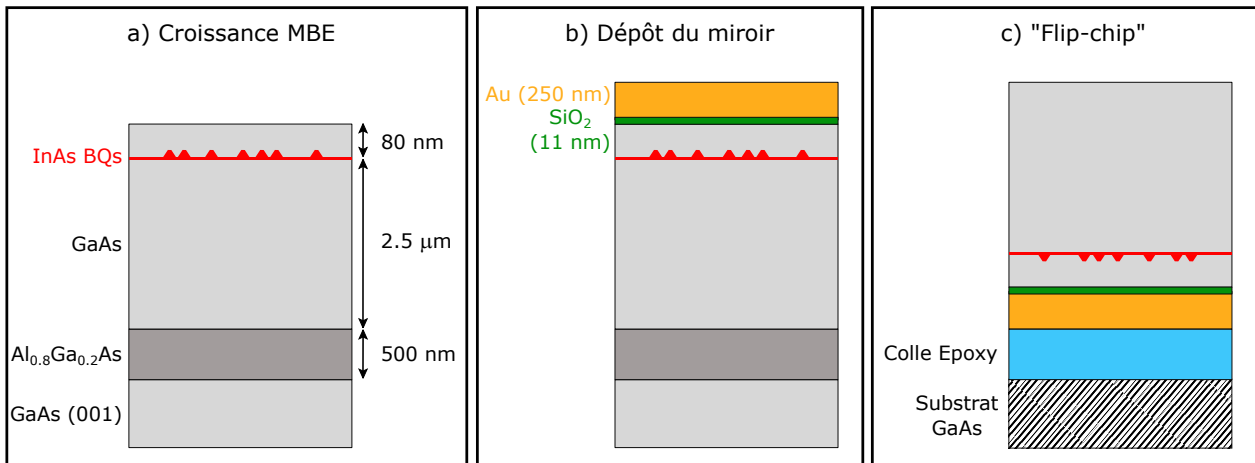


Fig. II.10 – Premières étapes de la fabrication. a) Croissance par épitaxie d'un échantillon planaire. La ligne rouge correspond à la couche de mouillage d'InAs et les triangles rouges représentent les BQs. b) Dépôt du miroir par évaporation par canon à électrons (e-beam evaporation en anglais). Ce miroir est constitué par une couche d'or (250 nm) et une fine couche de SiO_2 (11 nm). Cette dernière permet d'augmenter la réflectivité pour le mode fondamental HE_{11} . c) Étape du "flip-chip" : un substrat GaAs est collé côté miroir à l'aide d'une colle Epoxy. Puis le cristal GaAs(001) qui a servi de substrat à la croissance et la couche sacrificielle $\text{Al}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}$ sont retirés.

La formation des BQs nécessite l'évaporation de 1.9 MC d'InAs, et la densité des BQs est d'environ $100\text{ BQs}/\mu\text{m}^2$. Une fois les BQs formées, une couche de GaAs de 80 nm d'épaisseur est déposée pour encapsuler les BQs. Cette épaisseur correspond à la distance optimale par rapport au miroir, qui sera ensuite déposé à la surface de l'échantillon [36] (voir section 2.1).

Dépôt du miroir. La seconde étape consiste à déposer le miroir Au-SiO₂ sur la face supérieure de l'échantillon épitaxié (figure II.10 b)). Une couche de SiO₂ de 11 nm est déposée via un bâti d'évaporation à canon d'électrons. Puis une couche d'or de 250 nm est déposée par pulvérisation magnétron (RF magnetron sputtering en anglais). L'or possède une faible adhérence sur le dioxyde de silicium. Pour y remédier, une très fine couche de Ti de 3 nm est préalablement déposée avant le dépôt de l'or [136].

Flip-chip. La troisième étape est celle dite du "flip-chip" (figure II.10 c)). L'échantillon est collé du côté miroir sur un substrat GaAs à l'aide d'une colle Epoxy (M-bond 610). Puis le substrat GaAs(001) ayant servi lors de la croissance MBE est partiellement supprimé par une série de gravures mécaniques utilisant des disques abrasifs de différentes rugosités. L'abrasion est interrompue en laissant une épaisseur de GaAs $\sim 35 \mu\text{m}$ pour éviter de créer des défauts dans les couches actives. La couche de GaAs restante est ensuite supprimée par une gravure chimique sélective (acide citrique et H₂O₂ dilués dans de l'eau déionisée) avec une vitesse typique de gravure du GaAs de $\sim 1.5 \mu\text{m}/\text{min}$ [137]. Lorsque la couche d'AlGaAs est exposée à la gravure, de l'oxyde d'aluminium est formé et ne peut alors plus être dissout par l'acide citrique. Finalement la couche sacrificielle Al_{0.8}Ga_{0.2}As est enlevée par une seconde gravure chimique sélective utilisant de l'acide fluorhydrique concentré. Ce produit chimique grave sélectivement AlGaAs par rapport à GaAs [138,139]. La couche active en GaAs n'est donc pas affectée par cette gravure.

Gravure des antennes. La forme finale des antennes photoniques avec une extrémité en forme d'aiguille est obtenue avec une approche "top-down" en utilisant deux étapes de gravure ionique réactive (RIE pour reactive ion etching en anglais). Le principe, illustré sur la figure II.11 est de transférer la forme de cône d'un masque de Si₃N₄ sur la couche de GaAs.

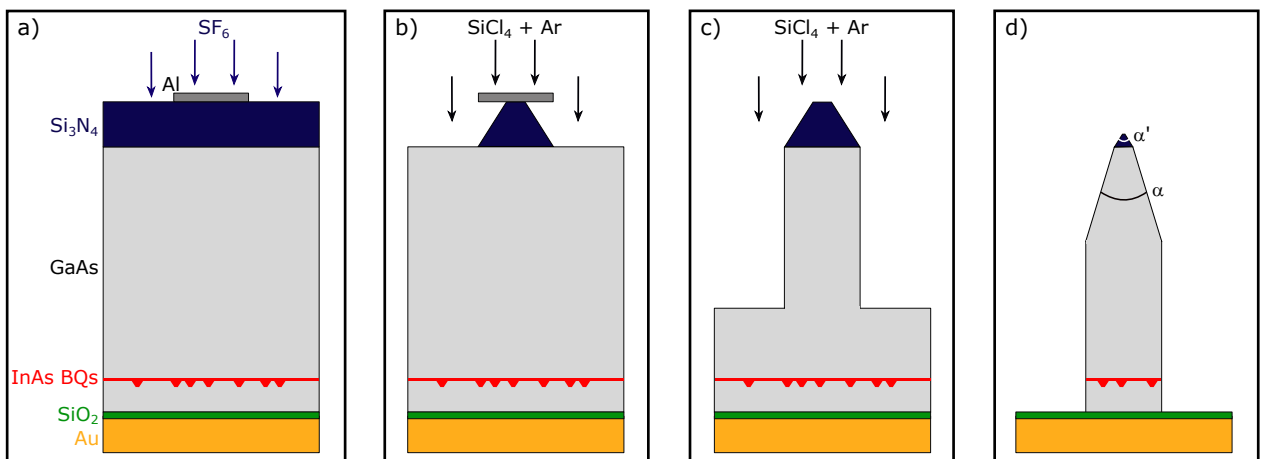


Fig. II.11 – Définition de l'antenne. a) Première gravure ionique réactive utilisant un gaz SF₆ optimisée pour graver la couche Si₃N₄ en forme de cône avec un angle α' . b) Deuxième gravure ionique réactive utilisant un gaz SiCl₄-Ar permettant de graver verticalement le GaAs. c) Une fois le masque en aluminium complètement gravé, le cône Si₃N₄ commence à être gravé permettant de transférer la forme conique au GaAs avec un angle plus faible α (d).

La première étape (Figure II.11 a)) est le dépôt d'une couche de Si₃N₄ d'épaisseur 400

nm qui servira à définir la forme en cône de la structure finale. Cette couche est déposée par dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma (PECVD pour plasma enhanced chemical vapour deposition en anglais). Puis un masque métallique en aluminium d'une épaisseur de 40 nm est défini par lithographie électronique à haute résolution. Ce masque sert à définir l'organisation globale de l'échantillon (matrice de structures avec des diamètres nominaux différents).

La première gravure RIE qui permet de graver la couche Si_3N_4 utilise un plasma SF_6 [140]. Le masque en aluminium est très robuste contre ce plasma [141] et ne subit quasiment aucune érosion. Tout autour des zones couvertes par l'aluminium, la couche Si_3N_4 est supprimée. Les conditions de gravure sont choisies pour favoriser la gravure chimique ce qui permet d'obtenir un cône sous les zones recouvertes d'aluminium avec un angle total d'ouverture $\alpha' \sim 40^\circ$ (figure II.11 b)).

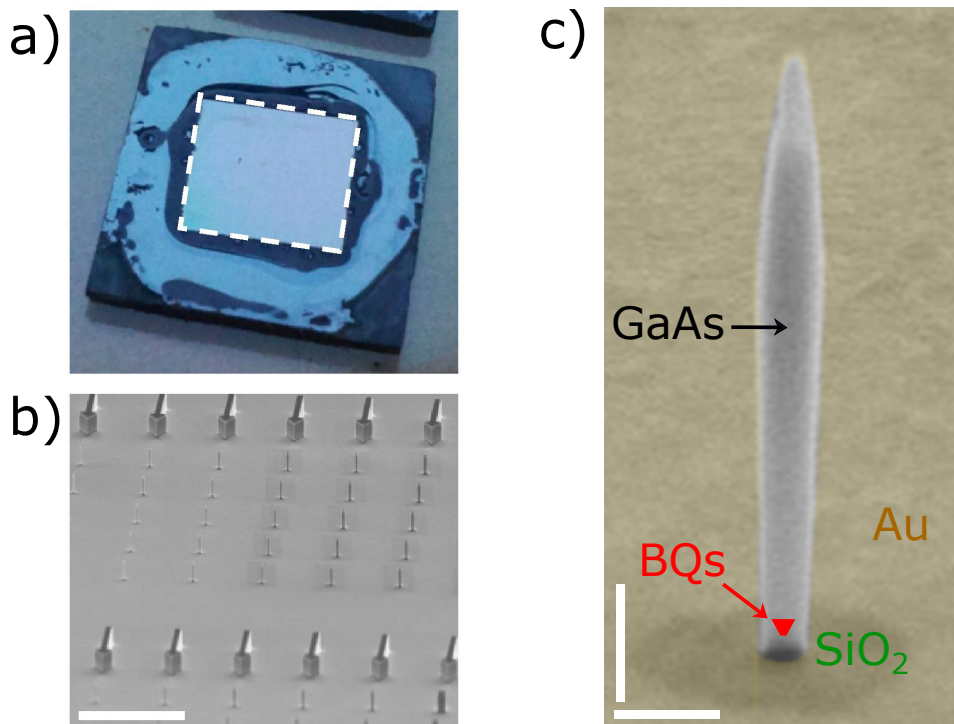


Fig. II.12 – Échantillon réalisé. a) Image par microscope optique de l'échantillon après flip-chip et avant gravure. La zone active en GaAs est délimitée par le carré blanc en pointillé. Sa dimension est $\sim 5 \times 5$ mm. b) Image réalisée au microscope électronique à balayage (MEB) d'une matrice de d'antennes gravées avec des diamètres nominaux de 800 nm à 100 nm avec un pas de 20 nm. On y voit également des flèches gravées permettant de s'orienter sur l'échantillon. La barre d'échelle correspond à $15 \mu\text{m}$. c) Image MEB tiltée d'une antenne. Les barres d'échelle représentent 500 nm. Cette figure est tirée de [122].

La dernière étape de la nanofabrication consiste à définir la forme finale des antennes. Pour cela, une deuxième gravure RIE utilisant un mélange de gaz SiCl_4 -Ar, bien connu pour graver efficacement le GaAs [142,143] est mise en place. Le SiCl_4 permet de favoriser la gravure chimique alors que l'Ar favorise la gravure physique. Le but étant de graver verticalement, un équilibre est trouvé entre les deux mécanismes, permettant de définir un fil de même

diamètre que celui du masque en aluminium (figure II.11 c)). De plus, lors de la gravure les atomes de silicium et d'oxygène (et de chlore dans une moindre mesure) se recombinaient pour former une couche de passivation tout autour du cœur en GaAs du fil. Cette couche est très importante car elle permet de stopper la gravure chimique latérale et d'obtenir des surfaces peu rugueuses. Une fois le masque en aluminium complètement gravé, la couche de Si_3N_4 commence également à être gravée permettant de transférer la forme de cône au fil GaAs avec un angle $\alpha < \alpha'$, car le GaAs est gravé plus rapidement que Si_3N_4 (figure II.11 d)). Ces deux angles sont liés par la relation :

$$\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right) = \frac{1}{S} \tan\left(\frac{\alpha'}{2}\right), \quad (\text{II.37})$$

avec S la sélectivité de la gravure (rapport entre les vitesses de gravure des deux matériaux). Avec $\alpha' = 40^\circ$ et $S \sim 10$, un angle $\alpha \sim 4^\circ$ devrait donc être atteint. La gravure s'arrête sur le miroir inférieur. La fin de la gravure est déterminée grâce à un suivi par laser interférométrique.

Cette section nous a permis de comprendre les différentes étapes de fabrication permettant de structurer l'échantillon planaire pour obtenir des antennes photoniques. La dernière étape de gravure est cruciale car les performances de ces structures sont directement liées à la géométrie des antennes.

3.2 Géométrie de l'antenne étudiée au Chapitre III

La figure II.12 montre l'échantillon utilisé lors de ce travail de thèse. Il a été réalisé par Nitin Malik et Julien Claudon en 2009. On peut y voir l'échantillon dans son ensemble avant les deux gravures RIE (a). La seconde image (b) est une image MEB montrant une matrice de structures avec des diamètres nominaux différents. (c) est un zoom sur un fil photonique avec un diamètre ~ 210 nm. Le fil de $2.8 \mu\text{m}$ de hauteur possède une surface peu rugueuse et une extrémité supérieure bien définie en forme de cône. Ce travail de thèse a porté sur l'étude de fils photoniques ayant des diamètres au niveau du plan des boîtes quantiques compris entre 200 et 300 nm. Dans cette gamme de taille ces structures photoniques offrent un couplage optimal au mode fondamental HE_{11} . Cette section détaillera la géométrie réelle de l'antenne étudiée au chapitre III. Nous avons effectué des analyses structurales par microscopie électronique à balayage (MEB) sous plusieurs directions et également à l'aide de coupes transverses faites par usinage par un faisceau d'ions focalisés (FIB pour focused ion beam etching en anglais). La connaissance de la géométrie complète des fils est utile pour analyser les mesures de champ lointain du chapitre III.

3.2.1 Anisotropie de gravure et ellipticité des fils

La première étude structurale a porté sur une antenne photonique dont le diamètre nominal est de 240 nm. Les principaux résultats du chapitre suivant ont été obtenus sur cette structure. Nous avons réalisé des images MEB selon deux directions orthogonales qui correspondent environ aux axes de clivage de GaAs (soit $[110]$ et $[\bar{1}10]$). Ces deux images sont visibles sur la figure II.13.

Ces images nous apprennent que la structure fait environ $2.8 \mu\text{m}$ de hauteur avec une surface assez lisse. On remarque également un élargissement du fil atteignant un maximum

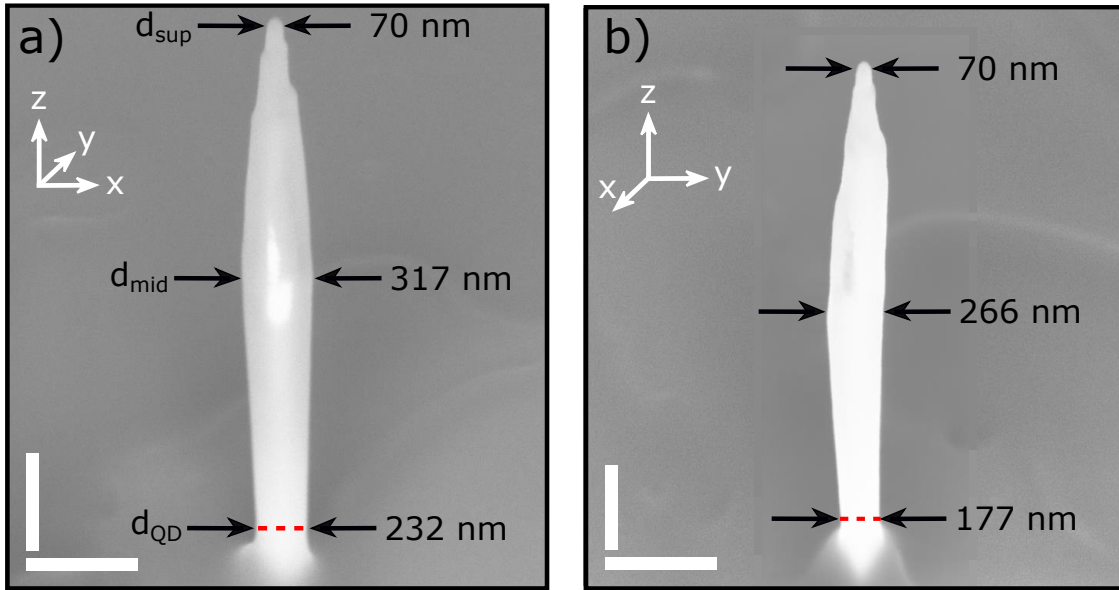


Fig. II.13 – Image MEB de la structure étudiée au chapitre III. Images MEB tiltées à 70° d’une antenne photonique dont le diamètre nominal est 240 nm . Cette structure a une hauteur de $2.8\ \mu\text{m}$. Le plan des BQs est indiqué par les traits rouges en pointillés et se situe à 80 nm au dessus du miroir inférieure. Ces deux images, qui ont été réalisées selon deux directions orthogonales, révèlent une légère ellipticité. Les barres d’échelle blanches correspondent à 500 nm .

à mi-hauteur sous l’extrémité supérieure en forme de cône. Nous verrons dans la prochaine section que cet élargissement est majoritairement dû à la couche de passivation entourant le fil en GaAs. De plus, le fil n’est pas parfaitement cylindrique, en raison d’une légère anisotropie de gravure lors de la dernière étape de nanofabrication. Au niveau des boîtes quantiques, le fil a un diamètre $d_{\text{QD}} = 232\text{ nm}$ selon la direction x et $d_{\text{QD}} = 177\text{ nm}$ selon la direction y révélant une ellipticité $\sim 24\%$. Cette ellipticité diminue le long de l’axe z pour entièrement disparaître à l’extrémité supérieure du fil.

Diamètre	Axe x	Axe y	Ellipticité	Moyenne
d_{sup}	70 nm	70 nm	0%	70 nm
d_{mid}	317 nm	266 nm	13%	292 nm
d_{QD}	232 nm	177 nm	24%	204 nm

Table II.2 – Dimensions du fil selon les deux directions orthogonales x et y .

Les dimensions de cette structure sont résumées dans le tableau II.2. L’ellipticité est assez faible pour considérer en première approximation un fil parfaitement cylindrique ayant un diamètre au niveau des BQs $d_{\text{QD}} = 204\text{ nm}$, à mi-hauteur $d_{\text{mid}} = 292\text{ nm}$ et à la facette supérieure $d_{\text{sup}} = 70\text{ nm}$ (dernière colonne du tableau II.2).

3.2.2 Géométrie de la couche de passivation — Coupes FIB

Nous avons vu à la section 3 qu'une couche de passivation est déposée sur les flancs du fil lors de la gravure. L'indice de réfraction de cette couche est vraisemblablement proche de celui de la silice (1.5), soit très proche de celui de l'air, et très inférieur à celui du cœur de GaAs (3.5). Cette couche ne joue donc pas un rôle important dans les propriétés optiques du fil. Les images MEB (figure II.13) ne nous permettent pas de connaître la géométrie réelle du cœur GaAs qui détermine les propriétés optiques de ces antennes. Durant ma thèse, nous avons alors effectué des coupes FIB transverses sur une structure dont le diamètre nominal est 260 nm à différentes hauteurs pour pouvoir observer le cœur de l'antenne. Ces coupes sont assez difficiles à réaliser du fait qu'il faut être quasi-rasant à l'échantillon pour obtenir des coupes transverses. Elles ont été effectuées avec l'aide d'Eric Gautier à SPINTEC (CEA-CNRS-UGA). La figure II.14 montre trois images MEB prises après découpes FIB effectuées à trois hauteurs différentes h_i . On y voit clairement une différence de contraste entre le cœur GaAs et la couche de passivation.

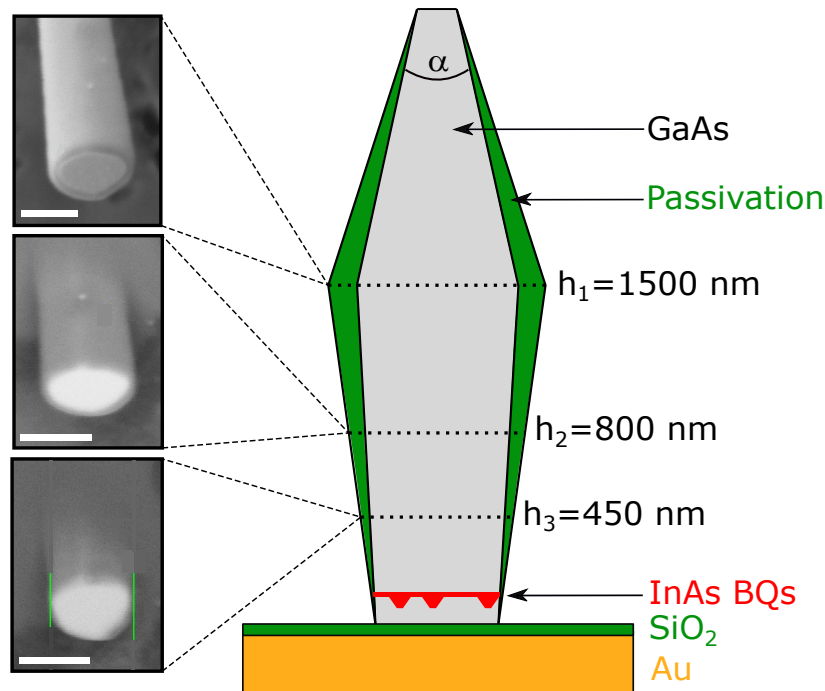


Fig. II.14 – Coupes FIB et géométrie du cœur de l'antenne. À droite : représentation schématique du fil photonique GaAs entouré d'une couche de passivation SiO_2 . Les traits en pointillés représentent les coupes FIB effectuées aux trois hauteurs h_i . La première a été faite à mi-hauteur où le fil est le plus large $h_1 = 1500$ nm, la seconde à $h_2 = 800$ nm et la dernière à $h_3 = 450$ nm. À gauche : une image MEB a été prise après chaque coupe FIB nous permettant de mesurer l'épaisseur de la couche de passivation e_{pass} . Les barres d'échelle blanches correspondent à 200 nm.

L'analyse de ces images nous a alors permis de déterminer l'épaisseur de cette couche e_{pass} le long du fil. A mi-hauteur du fil, $e_{\text{pass}} = 37$ nm. A 800 nm au dessus du miroir d'or $e_{\text{pass}} = 18$ nm et enfin à 450 nm de hauteur $e_{\text{pass}} = 12$ nm. L'épaisseur de cette couche suit donc un profil linéaire le long du fil et nous pouvons extrapoler qu'au niveau des boîtes quantiques ($h_{\text{QD}} = 80\text{nm}$) $e_{\text{pass}} = 2$ nm. Comme l'extrémité supérieure est produite par abrasion progressive

du masque, on peut raisonnablement supposer que la couche de passivation présente une épaisseur nulle au sommet de la structure. Nous faisons de plus l'hypothèse que l'épaisseur de la couche augmente de manière linéaire jusqu'au milieu du fil. Nous avons également fait l'hypothèse que cette couche de passivation se comporte de la même manière pour toutes les antennes ayant des diamètres nominaux équivalents à ± 20 nm près. En reprenant les dimensions du fil photonique de la section précédente, nous pouvons déterminer complètement la géométrie de son cœur en GaAs. Ces dimensions sont résumées dans le tableau suivant en se plaçant dans l'approximation d'un fil à géométrie cylindrique.

Hauteur	Diamètre externe moyen	Épaisseur de la couche de passivation	Diamètre moyen du cœur
$h_{\text{sup}} = 2.8 \mu\text{m}$	70 nm	0 nm	70 nm
$h_{\text{mid}} \sim 1.5 \mu\text{m}$	292 nm	37 nm	218 nm
$h_{\text{QD}} = 70 \text{ nm}$	204 nm	2 nm	200 nm

Table II.3 – Dimensions du cœur en GaAs du fil photonique dans l'approximation d'un fil à géométrie cylindrique.

On peut remarquer que l'élargissement à mi-hauteur du fil mesuré à la section précédente est majoritairement dû à la couche de passivation qui est plus épaisse à cette hauteur du fil. Cette analyse nous permet également de déterminer précisément l'angle α du cône de l'extrémité supérieure. Pour le fil étudié ici nous trouvons $\alpha = 6^\circ$ en bon accord avec la prévision de l'équation (équation II.37). Cet angle de 6 degrés est également en excellent accord avec les prévisions théoriques de champ lointain du chapitre III.

4 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de mieux comprendre comment est couplé un émetteur, comme une boîte quantique, à une antenne à fil photonique. Pour des diamètres de fil de l'ordre de λ/n , la fraction d'émission spontanée couplée au mode fondamental approche l'unité grâce à un bon confinement transverse du mode guidé et à une forte inhibition de l'émission dans les modes radiatifs. Une antenne à fil photonique offre une légère accélération de l'émission spontanée grâce à l'intégration d'un miroir d'or entre le substrat et le fil. De plus, la géométrie particulière en forme d'aiguille de l'extrémité supérieure du fil permet obtenir une émission directive en sortie de fil, ce qui assure une excellente collection de la lumière en champ lointain. Ces structures sont de plus large bande et offrent de bonnes performances sur une large plage de diamètres, ce qui relaxe les contraintes de fabrication. Nous avons également passé en revue la fabrication des antennes, qui passe par la structuration d'un échantillon planaire crû par épitaxie par jets moléculaires. Cette technique permet de contrôler très finement la position longitudinale des boîtes quantiques par rapport au miroir inférieur. Toutefois, en raison de la nucléation aléatoire des boîtes dans le plan de croissance, et en l'absence de technique de lithographie déterministe, la position transverse des émetteurs est aléatoire. Nous avons vu que ces antennes offrent des performances optimales pour des émetteurs positionnés

sur l'axe du guide. Outre la qualité du couplage avec le mode fondamental du guide, la position de l'émetteur a également un profond impact sur sa cohérence spectrale. En effet la largeur spectrale des transitions d'une boîte quantique peut être fortement affectée par des vibrations thermiques, même à des températures cryogéniques [53]. En particulier, le couplage avec des modes de flexions présentent une dépendance forte avec la position spatiale de l'émetteur [144]. De plus la proximité avec les bords du fil peut avoir également avoir un impact sur la cohérence des boîtes en augmentant les canaux non radiatifs [12] ou via le couplage avec des charges ou des défauts surfaciques. Pour comprendre les propriétés de l'antenne, et guider ensuite l'optimisation des ces structures, il est important de pouvoir connaître la position de l'émetteur au sein du fil. C'est l'objet du chapitre suivant qui propose et démontre expérimentalement une méthode de localisation tout-optique (et donc non destructive) permettant de déterminer la position transverse des boîtes quantiques intégrées à des fils photoniques.

Chapitre III

Détermination optique de la position radiale de boîtes quantiques intégrées dans un fil photonique

Contents

1	Introduction	77
2	Article dans sa version originale	78
3	Annexe : Données additionnelles	90
4	Conclusion	93

La position latérale d'une boîte quantique dans une antenne à fil photonique conditionne la force de l'interaction lumière-matière dans ces structures. De plus, elle influence le couplage à certains canaux de décohérence, et a donc un impact sur sa largeur spectrale. La connaissance de cette position est donc très utile pour comprendre et analyser les performances des antennes à fils photoniques, en vue de les améliorer. Dans ce chapitre, nous proposons et démontrons expérimentalement une technique tout-optique qui permet de localiser une boîte quantique dans la section d'un fil photonique (la position longitudinale de l'émetteur est supposée connue). Ce travail a été réalisé en collaboration avec l'équipe de Niels Gregesen (DTU Fotonik, Danemark), spécialiste en simulation numérique de nanostructures photoniques. Andreas Osterkryger, en thèse sous la direction de Niels Gregesen, a réalisé un séjour de trois mois dans l'équipe pour contribuer aux développements théoriques associés à ce projet. Après une section introductive, ce chapitre reproduit l'article associé à ces résultats, publié dans *Nano Letters* (langue anglaise). Nous présentons enfin en annexe quelques données additionnelles qui permettent de compléter les résultats expérimentaux.

1 Introduction

Nous avons vu au chapitre précédent que la position d'une boîte quantique au sein de la section d'un fil photonique a un impact important sur l'interaction lumière-matière. D'une part, le couplage au mode guidé fondamental est maximal sur l'axe et diminue quand on se rapproche des bords. Le couplage aux modes non-guidés augmente lorsqu'on se rapproche des bords du fil. D'autre part, la position de la boîte influence le couplage à des canaux de décohérence potentiels. On pense immédiatement aux surfaces du fil, qui sont susceptibles d'héberger des états de charge plus ou moins bien définis et fluctuants. Leur influence dans les fils photoniques reste à explorer. Un autre canal de décohérence, plus inattendu, a été découvert récemment dans l'équipe. Même à température cryogénique ($T = 4$ K), les vibrations thermiques d'un nanofil sont suffisantes pour induire un élargissement spectral significatif de la BQ (bien supérieur à la largeur radiative). En effet, lorsque le fil vibre, des fluctuations de contrainte sont générées à sa base, venant induire des fluctuations du gap du matériau constituant la boîte quantique, et donc des fluctuations de son énergie d'émission. Ceci a été mis en évidence expérimentalement pour les premiers modes de vibration dans la Ref. [53], puis analysé théoriquement et plus en détail dans la Ref. [54]. Il ressort de cette étude que l'impact des modes de flexion est très dépendant de la position latérale de la boîte : il est nul sur l'axe du fil et atteint une valeur maximale sur les flancs. Ainsi, il est important de connaître la position de la boîte pour comprendre les performances des dispositifs à base d'antenne à fil photonique. On peut tout de suite remarquer que pour être utile, cette localisation doit être très précise, avec une résolution spatiale bien meilleure que le rayon du fil (typiquement 100 nm).

Il existe deux grandes approches pour réaliser une antenne à fil photonique contenant des boîtes quantiques. La première, utilisée par l'équipe et décrite au Chapitre II, repose sur la gravure d'un échantillon planaire crû par épitaxie par jets moléculaires. Dans cette approche *top-down*, la position verticale des émetteurs est très bien contrôlée. Par contre, leur position latérale est complètement aléatoire. Une autre approche, dite *bottom-up*, permet d'obtenir le fil complet directement par croissance [41,42]. Cette croissance est en général catalysée par une gouttelette d'or et consiste en deux étapes. Dans une première étape de croissance axiale, on fait croître un fil fin (diamètre typique de 10 nm) dont le diamètre est grossièrement défini par le diamètre du catalyseur). La boîte quantique est définie comme une hétérostructure longitudinale. On change ensuite les conditions de croissance, pour induire la croissance latérale d'une coquille dont les dimensions sont compatibles avec de bonnes propriétés photoniques. Idéalement, le fil contient une seule boîte, localisée précisément sur l'axe du fil. En pratique, des instabilités des conditions de croissance ou des effets d'ombrage peuvent conduire à des boîtes hors axe [49,145]. Même avec cette stratégie de croissance *a priori* déterministe, il est donc intéressant de déterminer la position de la boîte.

Dans ce contexte, des techniques d'analyse structurales comme l'imagerie TEM, ou la tomographie par rayons X permettent de localiser très précisément la boîte. Toutefois, ces mesures nécessitent en général de préparer la structure à étudier en la désolidarisant de son substrat, rendant toute étude optique ultérieure délicate, sinon impossible. D'autre part, nous avons déjà observé que la simple exposition à un faisceau d'électrons modérément accélérés (10 kV), lors d'une séance d'imagerie MEB, peut modifier significativement le spectre d'émission

d'une boîte quantique. Dans un TEM, qui met en jeu des tensions accélératrices bien plus élevées, des modifications structurales irréversibles ont déjà été reportées [146]. Pour corrélérer résultats optiques et position de l'émetteur, il est bien sûr toujours possible de réaliser d'abord les mesures d'optiques et ensuite l'analyse structurale. D'un point de vue pratique, il serait toutefois préférable de pouvoir réaliser les deux mesures en parallèle, sans préparation d'échantillon préalable.

La technique que nous proposons fait uniquement appel à des mesures optiques, elle est donc non destructive. De plus, elle peut être mise en œuvre sur un banc de micro photoluminescence standard, et donc être réalisée en parallèle d'autres expériences d'optique. L'idée est d'utiliser deux familles de modes qui présentent des profils spatiaux très différents : le mode guidé fondamental (HE_{11} , deux fois dégénéré en polarisation) et le second mode guidé (TE_{01} , non dégénéré). Nous verrons plus loin qu'il est suffisant que TE_{01} soit présent sous forme d'un *leaky mode* (que l'on peut voir comme un mode guidé qui fuirait vers l'espace libre), ce qui étend la plage d'applicabilité de la méthode. En champ proche, les émissions dans HE_{11} et TE_{01} interfèrent, et la figure d'interférence obtenue dépend fortement de la position de la boîte. Cette figure d'interférence se retrouve dans le champ lointain, que l'on peut mesurer en microscopie de Fourier, associée à un filtrage spectral pour isoler l'émission d'une boîte quantique unique.

La microscopie de Fourier sur boîte unique a précédemment été utilisée dans l'équipe pour mesurer le diagramme de rayonnement de trompettes photoniques "géantes" [44]. Le filtrage spectral est obtenu grâce à deux filtres passe-bande de type Fabry-Pérot, dont on peut ajuster la longueur d'onde centrale en les inclinant suivant un axe (ici supposé vertical). Toutefois, cette inclinaison les rend sélectifs en polarisation : la polarisation verticale reste bien transmise, tandis que la polarisation transverse est partiellement éteinte, d'autant plus que le filtre est incliné. Ces effets de polarisation ne posaient pas de problèmes pour les mesures mentionnées plus haut (réalisées pour des structures opérant dans un régime strictement monomode et dégénéré en polarisation). Par contre, pour mettre en œuvre la technique de localisation proposée dans ce chapitre, il faut absolument rendre la cartographie du champ lointain insensible à la polarisation. Pour résoudre ce problème, j'ai introduit un polariseur vertical et une lame $\lambda/2$ avant les deux filtres Fabry-Pérot. La carte de champ lointain est alors reconstruite en sommant deux mesures, réalisées pour des angles de la lame $\lambda/2$ différant de 45° .

2 Article dans sa version originale

Main text

Introduction. Quantum emitters embedded into photonic nanostructures form the basis of modern solid-state quantum optics [25]. In this context, semiconductor quantum dots (QDs) integrated in nanowire antennas have recently attracted a large interest. Indeed, a tapered nanowire efficiently collects the QD spontaneous emission and shapes it into a directive free-space beam, enabling bright quantum light emission [40,41,43,46,48–50,147–149]. Importantly, this waveguide approach offers a broad operation bandwidth, a crucial asset to realize widely tunable single-photon sources [46,47] as well as bright sources of entangled photons

pairs [48,49] or correlated photon triplets [50]. Moreover, a tapered single-mode nanowire delivers a Gaussian output beam [44,150], which enables efficient coupling to a single-mode fiber, either using free-space optics [45] or through direct ‘butt’ coupling [120]. Beyond non-classical light emission, QD-nanowire antennas also constitute an appealing platform to explore the rich physics associated with waveguide quantum electrodynamics [151–155]. For example, this system enables a broadband and dramatic enhancement of optical non-linearities [52], eventually down to the single-photon level [51].

The position of the emitter inside such a photonic nanostructure has a profound impact on the device performance. It obviously determines the strength of the light-matter coupling, but also impacts the emitter spectral coherence. As shown recently, the QD optical linewidth is strongly affected by the nanowire thermal vibrations, even at cryogenic temperature [53]. In particular, the coupling to flexural modes features a steep spatial dependence [144]. In addition, the potential impact of surface states, which likely depends on the distance to the wire sidewall, remains to be explored in these structures. Therefore, further understanding and optimization of this promising light-matter interface call for a precise mapping of the QD position, on a spatial scale much smaller than the sub-micrometer wire diameter. The interest of position mapping is obvious for top-down structures embedding self-assembled QDs with a random lateral location [40,43,46]. In contrast, bottom-up approaches, via a combination of axial and subsequent radial overgrowth, nominally define a single QD on the nanowire axis (see for example Refs. [41,149]). However, in some cases, growth instabilities may result in an off-axis emitter [49,145].

In this context, conventional analysis techniques such as X-ray tomography or transmission electron microscopy yield precise structural information. However, they require delicate and time-consuming sample preparation, and moreover often irreversibly damage the photonic structure. Here, we propose an all-optical technique to locate individual QDs in a nanowire section. It exploits interferences associated with the simultaneous emission into two guided modes having different transverse profiles, which lead to a position-dependent far-field emission pattern. We demonstrate the method on a GaAs nanowire antenna embedding self-assembled InAs QDs. Using spectrally-resolved Fourier microscopy, we measure the far-field angular profile of individual QDs. Comparison with numerical simulations based on the structure geometry then yields the emitters position with an excellent accuracy (± 10 nm). This non-destructive mapping technique, which can be implemented on a standard micro-photoluminescence setup, constitutes a valuable tool for the future developments of QD-nanowire devices.

Principle of the localisation technique. The heart of a nanowire antenna is a “vertical” waveguide made of a high-index dielectric material [37]. We suppose in the following that the embedded emitter features optical dipole components which are perpendicular to the wire axis. Such a transverse configuration, demonstrated with top-down [13] or bottom-up [156] QDs, optimizes spontaneous emission control. The proposed mapping technique exploits the QD emission into two families of guided modes, which feature very different transverse profiles. A dielectric waveguide always supports a fundamental guided mode, commonly denoted HE_{11} . In a circular wire, this mode is two-fold polarization-degenerate. We choose a linear polarization basis $(\hat{r}, \hat{\theta})$, where the radial (\hat{r}) and orthonormal ($\hat{\theta}$) directions are defined by

the QD position \mathbf{r} (Fig. III.1(a)). In the following, HE_{11}^r (HE_{11}^θ) features a dominant in-plane electrical field component parallel to $\hat{\mathbf{r}}$ ($\hat{\boldsymbol{\theta}}$). Inside the wire, the field amplitude features a roughly Gaussian profile, with a maximum on the wire axis. For a proper choice of the wire diameter, the QD is also coupled to a higher-order, non-degenerate guided mode¹, TE_{01} . Its polarization is purely transverse, with an orthoradial local orientation. The field distribution assumes a ring shape, with a node on the wire axis.

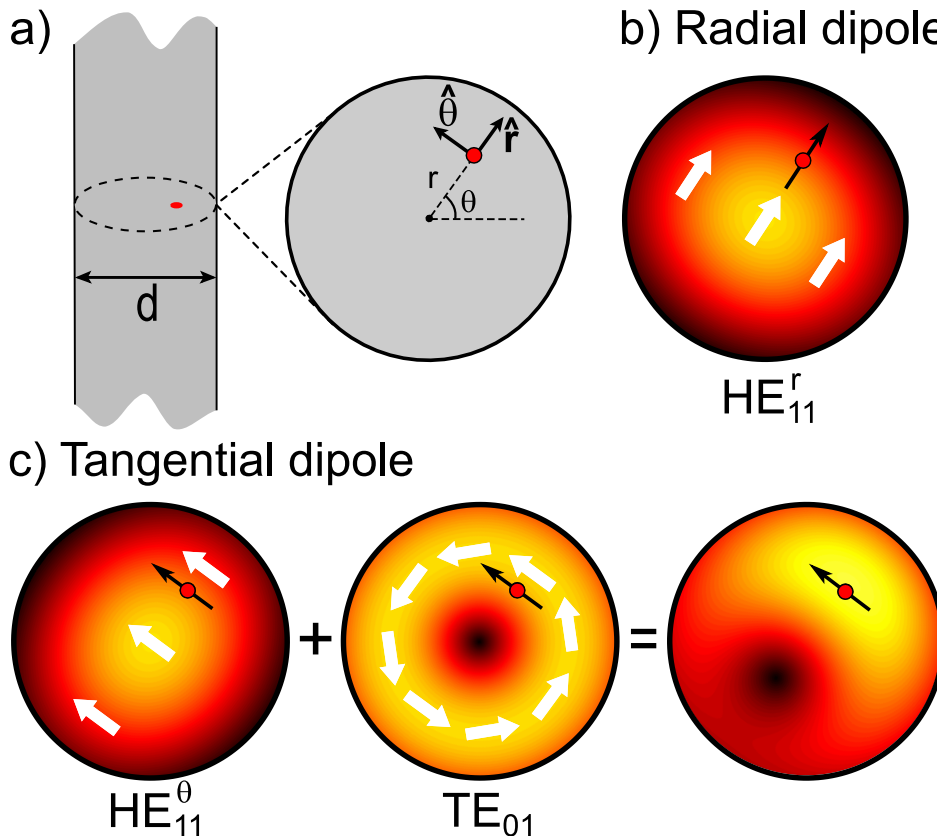


Fig. III.1 – Principle of all-optical position mapping. (a) Sketch of the photonic waveguide. It supports two families of guided modes : the fundamental guided mode (HE_{11}), which is two-fold polarization-degenerate, and a higher-order mode (TE_{01}). (b) A radial optical dipole (black arrow) only couples to HE_{11}^r . (c) An orthoradial optical dipole (black arrow) simultaneously feeds HE_{11}^θ and TE_{01} , leading to an interference pattern which strongly depends on the emitter position. (b) and (c) are color maps of the in-plane electric field intensity inside the waveguide. The white arrows represent the local polarization of the in-plane electric field.

To illustrate the mapping principle, we consider the intensity pattern in the near field, in the waveguide section that hosts the QD. This emitter is modelled as two in-plane linear optical dipoles with radial and orthoradial orientations. Moreover, these dipoles are supposed to be mutually incoherent : the total intensity is the sum of the contribution of each dipole. As illustrated in Fig. III.1(b), the radial dipole essentially excites HE_{11}^r (the small contribution to HE_{11}^θ can be safely neglected). Therefore, a variation of the QD position only influences

1. Another mode, TM_{01} , has a cut-off identical to the one of TE_{01} . It is however not optically-coupled to an emitter with in-plane dipole components.

the global brightness, but does not affect the spatial structure of the intensity pattern. In contrast, the orthonormal dipole simultaneously feeds HE_{11}^{θ} and TE_{01} and the corresponding optical fields interfere. Since the dipole locally imposes the same phase for the electric fields, the resulting interference pattern features a maximum on the QD side. On the opposite side, the fields associated with HE_{11}^{θ} and TE_{01} partially cancel each other, which reduces the intensity (see Fig. III.1(c)). This allows us to retrieve the QD azimuth in the wire section. Moreover, the shape of this interference pattern brings information on the radial QD position. For a close-to-axis QD, the contribution of HE_{11}^{θ} is dominant, and the small correction induced by TE_{01} shifts the intensity pattern associated with HE_{11}^{θ} . As the QD approaches the wire sidewall, the spontaneous emission into TE_{01} becomes dominant and the intensity pattern adopts a pronounced crescent shape. There is thus an intimate link between the near-field intensity distribution and the QD position. Similarly, the angular distribution of the far-field intensity emitted by a nanowire antenna strongly depends on the QD position, which enables emitter mapping using free-space optics.

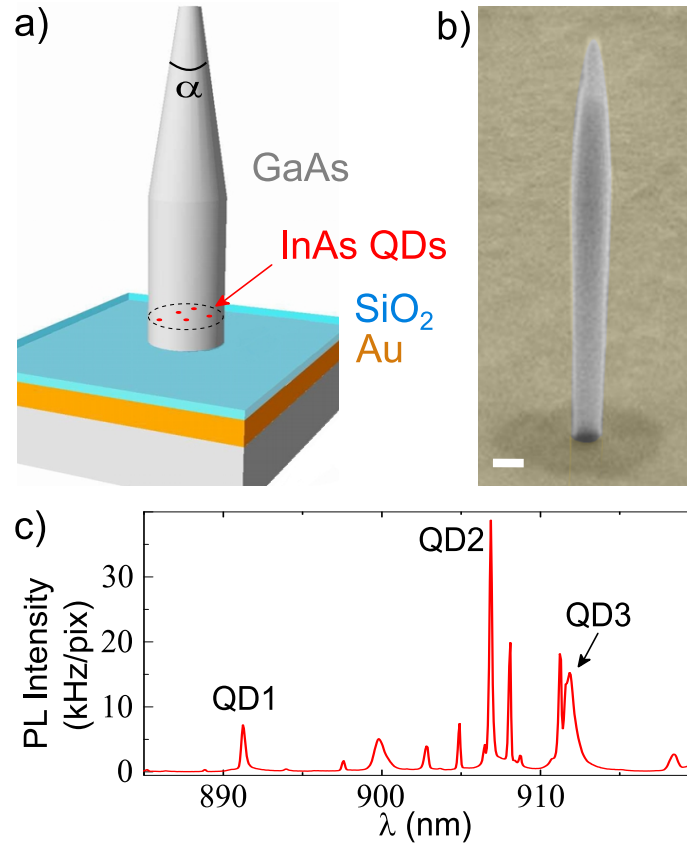


Fig. III.2 – Nanowire antenna. (a) Sketch of the nanowire antenna. The waveguide stands on a planar mirror, composed of a gold layer capped by a thin silica spacer. To achieve directive far-field emission, the top end of the wire features a conical taper. (b) Tilted scanning electron micrograph image of a representative nanowire (false colors). The scale bar represents 200 nm. (c) Micro-photoluminescence spectrum of the device, measured at cryogenic temperature. The spectrum, obtained under relatively high pumping power, features excitonic and multi-excitonic contributions.

Results. Figure III.2(a) is a schematics of the nanowire antenna investigated in this work. The device embeds a single layer of self-assembled InAs QDs. To optimize light collection with free-space optics, the GaAs nanowire stands on a bottom planar mirror and features a top conical taper. As detailed in Ref. [37], the structure was defined through the dry etching of a planar sample grown by molecular beam epitaxy. While this fabrication strategy offers an excellent control over the vertical position of the QDs, their lateral position in the waveguide section is however completely random. A scanning electron micrograph of the fabricated device is shown in Fig. III.2(b). Detailed inspection reveals that the waveguide features a slightly elliptical section, due to a small anisotropy of the etching. At the QD level, the mean diameter is $d = 200$ nm. More details on the structure geometry are given in Methods.

As a first characterization, we measure the nanowire micro-photoluminescence at cryogenic temperature ($T = 4$ K). The nanowire is attached to the cold finger of a liquid helium cryostat equipped with an optical window. Non-resonant optical excitation is provided by a continuous wave Ti-Sapphire laser, focused on the nanowire with a microscope objective (NA=0.75). The laser is tuned to $\lambda_{\text{laser}} = 825$ nm, below the bandgap energy of GaAs, and generates charge carriers in the QD wetting layer. The same microscope objective collects the QD luminescence, which is sent to a grating spectrometer equipped with a CCD camera for spectral analysis. The corresponding spectrum is shown in Fig. III.2(c). It features a series of sharp peaks, which correspond to the recombination of excitonic complexes trapped in QDs. In the following we focus on three spectral lines, labelled QD1, QD2 and QD3, whose central emission wavelength are 891.5 nm, 907.1 nm and 912.0 nm, respectively. In all cases, the emitted intensity increases linearly with the optical pumping power. In addition, polarization analysis reveals a fine-structure splitting for lines 1 and 2 : they are unambiguously attributed to the recombination of a neutral exciton. QD3 could be either a neutral exciton with a non-resolved fine structure splitting, or a charged exciton.

We now map the far-field angular profile associated with individual QD spectral lines. To this end, we have developed a Fourier-space microscopy setup [44,150,157,158] with narrow-band spectral filtering. As shown in Fig. III.3(c), the nanowire emission can be decomposed on a set of plane waves which leave the structure with a direction defined by the polar and azimuthal angles $\tilde{\theta}$ and $\tilde{\varphi}$, respectively. These plane waves are focused on the objective back focal plane, which is in turn imaged on a CCD camera. The transfer function of the objective has been carefully calibrated (see Methods), and the data that are presented in the following are corrected from the objective response. We isolate individual QD lines with a combination of two band-pass Fabry-Perot filters (F_1 and F_2). Their central frequency can be finely tuned by tilting them independently with respect to the optical axis. However, such a tilt introduces a strongly polarization-dependent transmission. To circumvent this issue, we additionally employ a combination of a $\lambda/2$ waveplate and a linear polarizer. The polarizer axis is aligned along the filter tilting axis. The waveplate is used to rotate the polarization of the nanowire output beam, and we reconstruct the far-field map as the sum of two images, taken for two waveplate angles that differ by 45° .

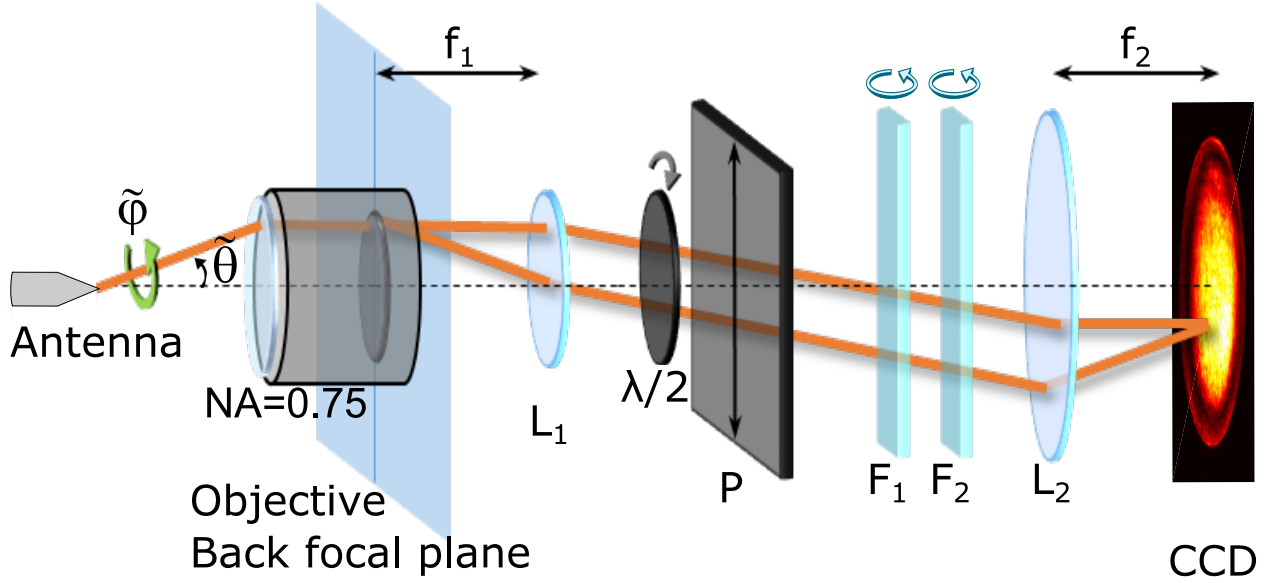


Fig. III.3 – Spectrally resolved Fourier microscopy setup. The angular distribution of the far-field intensity is mapped by imaging the back focal plane of the microscope objective onto a CCD camera with two lenses L_1 and L_2 . Tunable, narrow-band spectral filtering is provided by a combination of two bandpass filters (F_1 and F_2), which can be independently tilted. To perform measurements in the presence of the strong polarization anisotropy induced by the tilted filters, we introduce a $\lambda/2$ waveplate and a linear polarizer (P).

Figure III.4(a) illustrates the quality of the spectral filtering achieved thanks to the Fabry-Perot filters : the lines QD1 – 3 stand on a clean background. The corresponding measured far-field maps are shown in panel (b). The graphs present the color-coded measured intensity in the $\tilde{\theta} - \tilde{\varphi}$ plane. The white circle corresponds to the maximum collection angle of the microscope objective ($\tilde{\theta}_{\max} = 49^\circ$ for $\text{NA}=0.75$). Quite remarkably, one obtains very different far-field maps for QDs embedded in the same nanowire. Indeed, QD1 features a roughly Gaussian shape, which indicates a dominant contribution of the emission into HE_{11} , and thus a relatively central position in the wire section. In contrast, QD2 and QD3 feature a crescent shape indicating that they are located closer to the sidewall. Interestingly, QD2 and 3 feature nearly mirror-like far-field patterns, indicating opposite positions with respect to the nanowire axis. The diversity of the measured QD far-field patterns in the same nanowire antenna is a first indication of the large sensitivity of this physical property on the QD position.

For quantitative analysis, we now turn to the numerical modelling of the far-field data. We take into account the actual QD emission wavelength and we assume a circular symmetry for the antenna. Most geometrical parameters are fixed, as obtained from structural characterization. The far-field angular profile is calculated with an open-geometry Fourier modal method [159] and a standard near-field to far-field transformation [160], where the lateral QD position in the waveguide section is a free parameter, varied to maximize the overlap with the experimental data. The complete procedure, described in Methods, reproduces the measurements with an excellent accuracy (see Fig.III.4(c)). Moreover, the fit directly yields the QD positions, which are shown in Fig. III.5. Owing to the large sensitivity of the far-field pattern on the QD position, we pinpoint the emitter position with an excellent accuracy

(typical value : ± 10 nm). Here, the error bar along the radial direction is dominated by the deviation from rotational symmetry. The error bar along the orthoradial direction is set by the determination of the symmetry axis of the far-field experimental data ($\pm 12^\circ$ for QD1 and $\pm 6^\circ$ for QD2 and QD3).

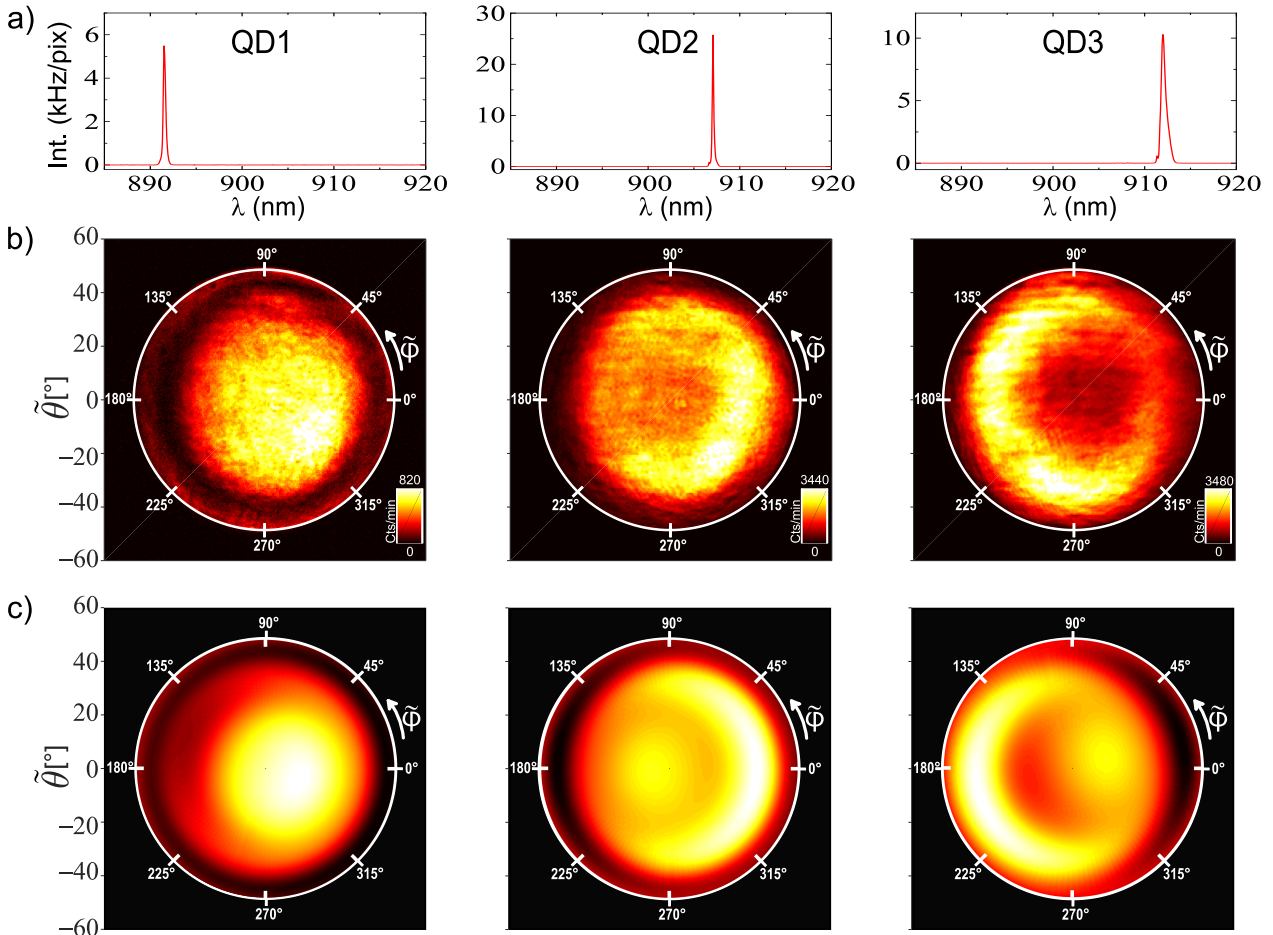


Fig. III.4 – Far-field emission of individual QDs. We focus on three spectral lines (QD1, QD2 and QD3) from the same nanowire antenna. (a) Spectral filtering of individual QD lines, obtained by adjusting the tilt of the filters F_1 and F_2 (see Fig. III.3). The filtered spectra are acquired with a grating spectrometer. (b) Measured angular distribution of the far-field intensity emitted by individual QDs. The color codes the light intensity emitted in the $(\tilde{\theta}, \tilde{\varphi})$ direction (see Fig. III.3 for angle definition). In each map, the solid circle corresponds to the maximum collection angle of the microscope objective ($\tilde{\theta}_{\max} = 49^\circ$). The data are corrected for the microscope response. (c) Calculated far-field angular profiles. In each case, the QD position in the waveguide section is adjusted to maximize the overlap between the experimental and simulated far-field profiles.

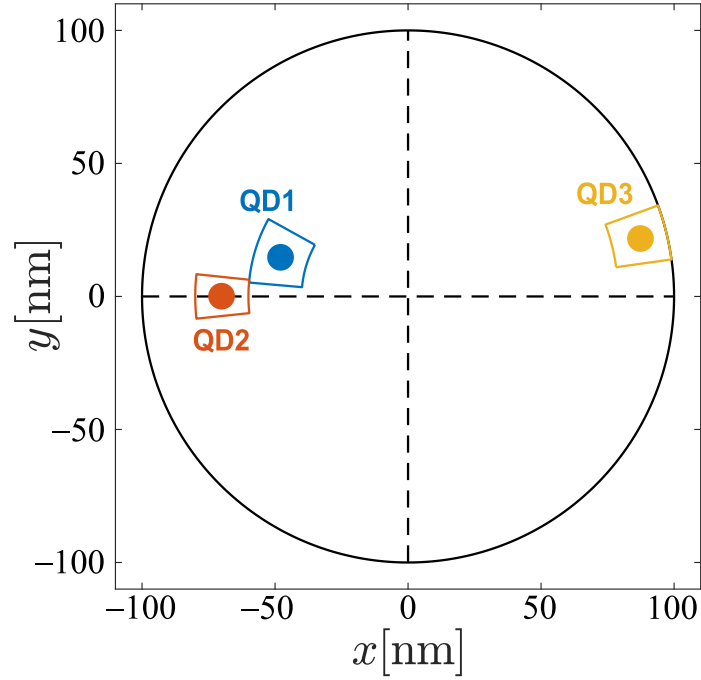


Fig. III.5 – Map of the positions of the three QDs. As determined from the fit of far-field measurements. The dot size represents the typical diameter of an InAs QD (10 nm) and the solid perimeter pictures the position uncertainty.

In Table III.1, we correlate the radial position r of the QDs with their photoluminescence decay rate, measured with a time-resolved setup. The experimental decay rates, Γ , are here normalized to the decay rate of similar QDs embedded in bulk GaAs, $\Gamma_{\text{bulk}} = 0.71 \text{ ns}^{-1}$ (Ref. [13]). In particular, one observes a pronounced inhibition of spontaneous emission for QD3, with a slow-down by a factor of 2 as compared to the bulk reference. This directly reflects the significant decrease of the local density of optical states as the emitter approaches the wire sidewall [13]. For quantitative comparison, the calculated values of the normalized spontaneous emission rate also appear in the Table. The data are in reasonable agreement with the calculation.

		QD1	QD2	QD3
Normalized radial position (r/R)		0.5 ± 0.1	0.7 ± 0.1	0.9 ± 0.1
Normalized decay rate ($\Gamma/\Gamma_{\text{bulk}}$)	Exp.	1.11 ± 0.03	1.08 ± 0.01	0.50 ± 0.04
	Th.	1.10 ± 0.2	0.65 ± 0.2	0.34 ± 0.2

Table III.1 – QD photoluminescence decay rate. The radial position r of each QD is determined by the mapping technique, and is here normalized to the nanowire radius $R = 100 \text{ nm}$. The photoluminescence decay curves of QD1 and QD2 are bi-exponential : Γ then corresponds to the fast, initial decay. QD3 features a mono-exponential decay. Error bars correspond to the fit uncertainty. The error bars for the calculated value reflect the uncertainty on the measured radial position.

Discussion and conclusion. We now discuss the application range of the technique in terms of wire diameter d and free-space operation wavelength λ . The two-mode (HE_{11} - TE_{01}) configuration exploited in the mapping procedure is preserved for $0.20\lambda < d < 0.31\lambda$. Interestingly enough, the lower bound is slightly smaller than the strict cut-off diameter of TE_{01} ($d_{\text{co}} = 0.23\lambda$) : for $0.20\lambda < d < 0.23\lambda$, TE_{01} is present as a ‘leaky’ mode, which can be roughly considered as a guided mode with losses into free-space. This contribution appears as an increase in the emission rate into radiative modes in Fig. III.6.

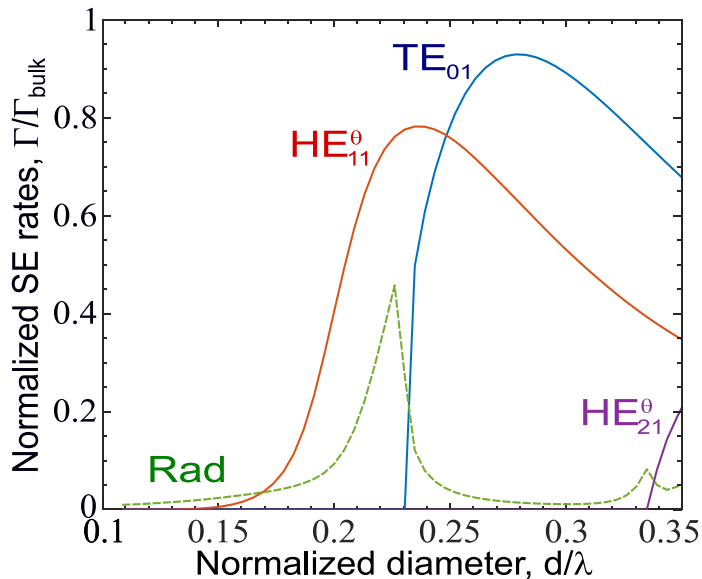


Fig. III.6 – Normalized spontaneous emission rates as a function of the reduced diameter d/λ . We consider an off-axis tangential linear dipole, whose relative radial position is fixed to $r/R = 0.6$ ($R = d/2$ is the nanowire radius). The calculation includes the effect of the bottom mirror. The continuum of radiation modes, which includes ‘leaky’ guided modes, is denoted ‘Rad’.

For similar reasons, the upper diameter limit is smaller than the cut-off of the next guided mode, HE_{21} ($d_{\text{co}} = 0.33\lambda$). These numerical values correspond to GaAs, with a refractive index $n = 3.495$ in the considered spectral range ; general expressions for mode cut-offs are given in the Methods section. The positioning accuracy is directly conditioned by the contrast of the interference between HE_{11} and TE_{01} . Achieving sufficient contrast implies that an off-axis QD can feed HE_{11} and TE_{01} with limited unbalance between the two modes. As seen in Fig. III.6, our experimental demonstration was performed on the verge of the appearance of TE_{01} ($d = 0.22\lambda$). As d increases, both modes become similarly confined in the wire, which further improves the positioning accuracy. Importantly, the diameter range compatible with position mapping covers nanowire dimensions which offer optimal light-matter coupling ($0.21\lambda < d < 0.28\lambda$, for which more than 90% of the spontaneous emission of an on-axis QD is coupled to the fundamental guided mode).

Another interesting question is related to the model used to describe the emitter (radial and orthoradial optical dipoles, without mutual spectral coherence). At first sight, it might seem surprising that a single optical dipole configuration can faithfully represent the diversity of low-energy excitonic complexes that are commonly trapped in a QD. One can show that

it is indeed the case for a charged exciton under non-resonant excitation, and for a neutral bi-exciton, without specific condition. The case of the neutral exciton is more subtle : our model applies only if a fast spin-flip process couples the two bright excitonic states. Previous work has shown that such a mechanism is at play in our QDs [161]. If it were absent, the neutral bi-exciton transition could alternatively be exploited to perform the mapping. More details are given in the methods section ; the full calculation, which is rather technical but without major difficulty, will be published elsewhere [162].

The all-optical mapping technique introduced in this work complements opto-mechanical techniques that were recently demonstrated on larger nanowire structures. Their principle, akin to magnetic resonance imaging, is to probe the optical response of QDs immersed in a large transverse stress gradient which is generated by flexural vibrations [144]. This approach requires mechanical driving and detection, and thus imposes additional experimental complexity. In addition, mechanical detection can be challenging for tiny nanowires, such as the one investigated in this article. Later on, it was proposed to use thermal noise as a self-calibrated excitation of vibration modes [53]. Though very elegant, this solution comes at a price. Without information on the mechanical phase, one can only map the QD position in a quarter of plane. The method discussed in this work offers a full 2D-mapping in the waveguide section and can be implemented on a standard micro-photoluminescence setup. We also note that in the case of an off-axis emitter with a known radial position, as in Ref. [148], far-field mapping can in principle be used to constrain the QD longitudinal position to a limited set of discrete values.

Potential future applications include the optimization of light-matter interfaces based on QD-nanowire systems. In particular, achieving an optimal spectral coherence for the emitter represents a significant challenge, motivated by important applications in quantum technologies. For this it will be necessary to disentangle the impact of decoherence channels, and these often depend on the QD position. Beyond single-QD devices, the technique will be also very useful to explore the coupling between distinct emitters, which can be mediated by short range Coulomb interaction [52], or by the coupling to a common optical guided mode.

Methods

Device geometry. The QD layer is located 80 nm above the bottom mirror, which is composed of a SiO₂ spacer (11 nm) and a gold layer (250 nm). First information on the nanowire geometry is obtained from tilted observation with a scanning electron microscope. The total height of the structure is 2.9 μm . Due to a residual anisotropy of the etching, the waveguide section features a slightly elliptical shape. At the QD level, the major (minor) axis of the waveguide section features a diameter $d_{\text{major}} = 225$ nm ($d_{\text{minor}} = 175$ nm). This corresponds to a mean diameter $d = 200$ nm, as mentioned in the main text. During the dry etching step, a passivation shell made of a low-index material (SiO_x) is deposited around the high-index core GaAs wire, which governs the optical properties. To determine the shell geometry and deduce the one of the core, we employed a combination of scanning electron microscopy and focused ion beam milling on another device with the same nominal dimensions. Cuts at different heights reveal that the shell thickness is negligible (a few nm) at the QD level. It progressively increases up to 35 nm at mid-height, and decreases along the tapered section.

The total opening angle of the core GaAs taper was measured to be $\alpha = 6^\circ$.

Measurement of the far-field angular profile. As shown in Fig. III.2(c), the antenna emission can be decomposed on a set of plane waves with a propagation direction defined by the polar and azimuthal angles $\tilde{\theta}$ and $\tilde{\varphi}$. These plane waves are focused on a point $(\rho_{\text{obj}}(\tilde{\theta}), \tilde{\varphi})$ of the objective back focal plane, with $\rho_{\text{obj}}(\tilde{\theta})$ the radial distance to the optical axis. To obtain the antenna far-field angular profile, one needs to determine : i) the dependence of ρ_{obj} on $\tilde{\theta}$ and ii) the objective transmission T_{obj} for relevant incidence angles $\tilde{\theta}$. Such a calibration is performed using a collimated beam that can be arbitrary oriented with respect to the optical axis (see the Supplementary Information of Ref. [44] for more details). The measurements reveal that $\rho_{\text{obj}}(\tilde{\theta})$ is a linear function of $\tilde{\theta}$. One then uses the cut-off angle of the objective, directly visible as a circular border on the CCD image to determine farfield center $\tilde{\theta} = 0^\circ$. In practice, this is accomplished with a Matlab routine. The maximum incidence angle $\tilde{\theta}_{\text{max}} = 49^\circ$ is given by the objective numerical aperture ($\text{NA} = 0.75$).

As discussed in the main text, we acquire two farfield maps, corresponding to two orthogonal linear polarizations. In practice, a slight tilt of the $\lambda/2$ waveplate can induce a slight shift of the beam between the two images. Therefore we first determine the center of the far-field profile using the above-mentioned procedure and then sum the two centered contributions. The CCD dark counts are subtracted from the data.

Finally, the data are corrected for the objective transmission. The measured $T_{\text{obj}}(\tilde{\theta})$ dependence is reproduced with an empirical sine function, used to correct the CCD intensity. Note that close to the objective cut-off angle, T_{obj} has dropped by 35% relatively to the on-axis value. Such a correction is therefore mandatory for a quantitative analysis of the results.

Simulation of the far-field angular profile. The QDs are modelled as two linear optical dipoles (a radial and an orthoradial one), which are mutually incoherent. The antenna is modelled as a circular cylinder of diameter $d = 200\text{nm}$ and height h , which is surmounted by a conical taper with an opening angle $\alpha = 6^\circ$. d and α are fixed parameters, which have been measured on the actual structure. The QD vertical position (80nm above the bottom mirror) is defined by the epitaxial growth. The QD lateral position is a free parameter, varied to maximize the overlap with the experimental data. The procedure is repeated for values of h which increase by steps of 50nm. This increment is much smaller than the spatial period of the oscillation of the field profile along the wire axis ($\lambda/\Delta n_{\text{eff}} > 1.3\ \mu\text{m}$, with Δn_{eff} the effective index difference between HE_{11} and TE_{01}). For $h = 1950\text{nm}$, we obtain an excellent agreement with the measurements. Note that although the details of the far-field maps are sensitive to h , the QD position inferred with this technique is independent of h in the 1900 – 2000 nm range. This is an indication of the robustness of the mapping technique.

Cut-off of relevant guided modes. The cut-off diameter d_{co} for the various guided modes supported by a cylindrical dielectric waveguide are given in Ref. [163]. For convenience, we give here general expressions for a nanowire with a refractive index n , immersed in a background with a refractive index equal to 1. In the following, λ is the free-space operation wavelength. The fundamental mode, HE_{11} , is always present : $d_{\text{co}}(\text{HE}_{11}) = 0$. The next

relevant mode is TE_{01} ; its cut-off is the smaller solution of $J_0(u) = 0$, with $u = \pi \left(\frac{d_{\text{co}}}{\lambda}\right) \sqrt{n^2 - 1}$ and J_0 the Bessel function of order 0. This leads to the approximate expression $d_{\text{co}}(\text{TE}_{01}) \approx 0.765 \frac{\lambda}{\sqrt{n^2 - 1}}$. The cut-off of the next guided mode, HE_{21} , is the first solution of $uJ_0(u)/J_1(u) = -(n^2 - 1)$, which should be solved numerically.

Optical dipole model. In the main text, we have modelled the emitter as two linear optical dipoles, $\boldsymbol{\pi}_r$ and $\boldsymbol{\pi}_\theta$, with radial and orthoradial orientations, respectively. Since we assume that they are mutually incoherent, the local intensity I_{model} in a waveguide section can thus be calculated as $I_{\text{model}} = \frac{1}{2}I_{\pi_r} + \frac{1}{2}I_{\pi_\theta}$. Here, I_{π_r} (I_{π_θ}) is the intensity radiated by a fully-populated $\boldsymbol{\pi}_r$ ($\boldsymbol{\pi}_\theta$) dipole and the prefactors account for the population of each dipole. This writing convention runs along all the section. In the following, we examine in which conditions this model applies to excitonic complexes that are commonly found in a QD. The full calculation, which is tedious but without difficulty, will be published elsewhere.

(a) *Singly-charged QD.* Without loss of generality, we consider in this paragraph that the QD is populated with a resident hole, whose pseudo-spin can take ‘up’ (\uparrow) or ‘down’ (\downarrow) orientation. The addition of an electron-hole pair leads to two possible trion states, T_\uparrow and T_\downarrow . In the absence of external magnetic field, there are two dipole-allowed optical transitions : $\uparrow \leftrightarrow \text{T}_\uparrow$ and $\downarrow \leftrightarrow \text{T}_\downarrow$; they are degenerate in energy and their circular optical dipoles, $\boldsymbol{\sigma}_+$ and $\boldsymbol{\sigma}_-$, feature opposite handedness. Non-resonant optical excitation, combined with the absence of chiral photonic effect, ensures that the total emission is a balanced statistical mixture of the two contributions : $I_{\text{T}} = \frac{1}{2}I_{\sigma_+} + \frac{1}{2}I_{\sigma_-}$. Each $\boldsymbol{\sigma}$ dipole can be separately expressed as the *coherent* sum of two linear dipoles, that are in phase quadrature and oriented along the radial and orthoradial directions. The terms associated with the mutual coherence of r - and θ -dipoles present in I_{σ_+} and I_{σ_-} cancel each other, which leads to $I_{\text{T}} = I_{\text{model}}$.

(b) *Neutral QD.* The ‘empty’ state, \emptyset , constitutes the ground state of the system. The addition of an electron-hole pair leads to four excitonic states. Two of them, so-called bright excitons, feature a dipole-allowed optical transition with the ground state. Real QDs are usually elongated along one crystalline direction. Such a symmetry reduction lifts the energy degeneracy of the two bright excitonic states, H and V. The transition $\emptyset \leftrightarrow \text{H}$ ($\emptyset \leftrightarrow \text{V}$) features a linear optical dipole, $\boldsymbol{\pi}_h$ ($\boldsymbol{\pi}_v$). These dipole are mutually orthogonal and their orientation is fixed by the QD geometry; we also assume that $|\boldsymbol{\pi}_h| = |\boldsymbol{\pi}_v|$. The addition of a second electron-hole pair leads to a singlet bi-exciton state, XX. The transition $\text{H} \leftrightarrow \text{XX}$ ($\text{V} \leftrightarrow \text{XX}$) features a linear optical dipole $\boldsymbol{\pi}_h$ ($\boldsymbol{\pi}_v$).

The intensity associated with the bi-exciton recombination reads $I_{\text{XX}} = \frac{1}{2}I_{\pi_h} + \frac{1}{2}I_{\pi_v}$ ($\boldsymbol{\pi}_h$ and $\boldsymbol{\pi}_v$ are mutually incoherent). One then expresses $\boldsymbol{\pi}_h$ and $\boldsymbol{\pi}_v$ in the $(\hat{r}, \hat{\theta})$ basis and finds that $I_{\text{XX}} = I_{\text{model}}$.

The case of the exciton is more subtle. Even under non-resonant (and thus unpolarized) excitation, the population of H and V may differ, because these states can experience different spontaneous emission decays. A fast spin-flip between these states however establishes a population equality. Previous work has shown that such a mechanism is at play in our QDs [161]. In these conditions, $I_{\text{X}} = \frac{1}{2}I_{\pi_h} + \frac{1}{2}I_{\pi_v}$, and one obtains $I_{\text{X}} = I_{\text{model}}$.

3 Annexe : Données additionnelles

Nous présentons ici quelques résultats supplémentaires obtenus durant ce travail et qui n'apparaissent pas dans l'article en lui-même. Nous présentons ainsi : i) des mesures de caractérisation des BQs 1, 2 et 3 (montée en puissance, analyse de la structure fine et temps de déclin), ii) la calibration de la transmission de l'objectif de microscope en fonction de l'angle d'incidence et iii) des cartes de champ lointain pour des BQs intégrées dans une antenne strictement monomode.

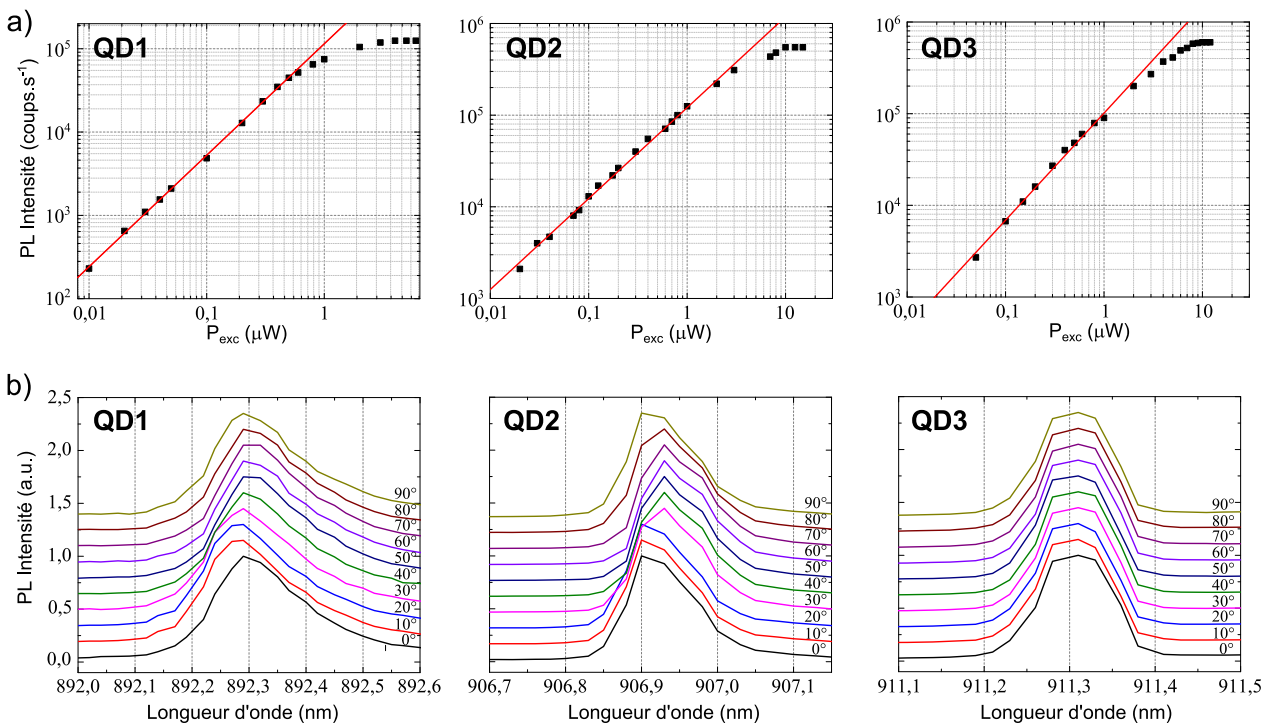


Fig. III.7 – Caractérisation optique des trois raies individuelles QD1, QD2 et QD3. (a) Intensité intégrée en fonction de de la puissance d'excitation P_{exc} pour les trois BQs QD1, QD2 et QD3 sous excitation continue. Les courbes en rouge sont des fits linéaires reproduisant les premiers points expérimentaux. Ils nous donnent $\log(I_{QD1}) \sim 1.34 \times \log(P_{exc})$, $\log(I_{QD2}) \sim 1.06 \times \log(P_{exc})$ et $\log(I_{QD3}) \sim 1.11 \times \log(P_{exc})$. (b) Analyse en polarisation de ces mêmes BQs. On ajoute ici une lame demi-onde $\lambda/2$ et polariseur linéaire sur le trajet optique. Le polariseur est aligné selon une direction fixe alors que la lame est utilisé pour faire tourner la polarisation du faisceau incident. Spectres normalisés pour différents angles de la lame demi-onde à la puissance $P_{exc} = 2 \mu W$.

Caractérisation optique des BQs 1, 2 et 3. Comme évoqué dans l'article, nous avons réalisé plusieurs caractérisations optiques sur les trois raies spectrales étudiées pour pouvoir identifier à quels complexes excitoniques elles sont associées. La figure III.7 a) présente les dépendances en puissance de l'intensité associée à chaque raies. La figure III.7 b) montre l'analyse en polarisation de ces raies pour déterminer si elles présentent un splitting de structure fine. La dépendance linéaire des montées en puissance montre que ces trois raies sont associées à des excitons neutres ou chargés. QD1 et 2 présentent un splitting de structure

fine : ce sont donc des excitons neutres. QD3 est associée soit à un exciton neutre avec un splitting de structure fine non-résolu, soit à un exciton chargé.

La figure III.8 montre les mesures de temps de vie des trois BQs permettant d'obtenir les taux de recombinaison radiative résumés dans le tableau III.1. Ici, le laser d'excitation Ti :sapphire est réglé en mode pulsé (impulsions avec une largeur temporelle à mi-hauteur de 0.2 ps, à la fréquence de 76 MHz). Coté détection, la résolution temporelle est obtenue avec une photo-diode à avalanche (APD). Ces mesures de temps de vie sont reproduites avec une fonction bi-exponentielle décroissante. Le temps rapide est normalisé par rapport au temps de recombinaison d'une BQ dans le matériau massif, et reporté ensuite dans le tableau III.1.

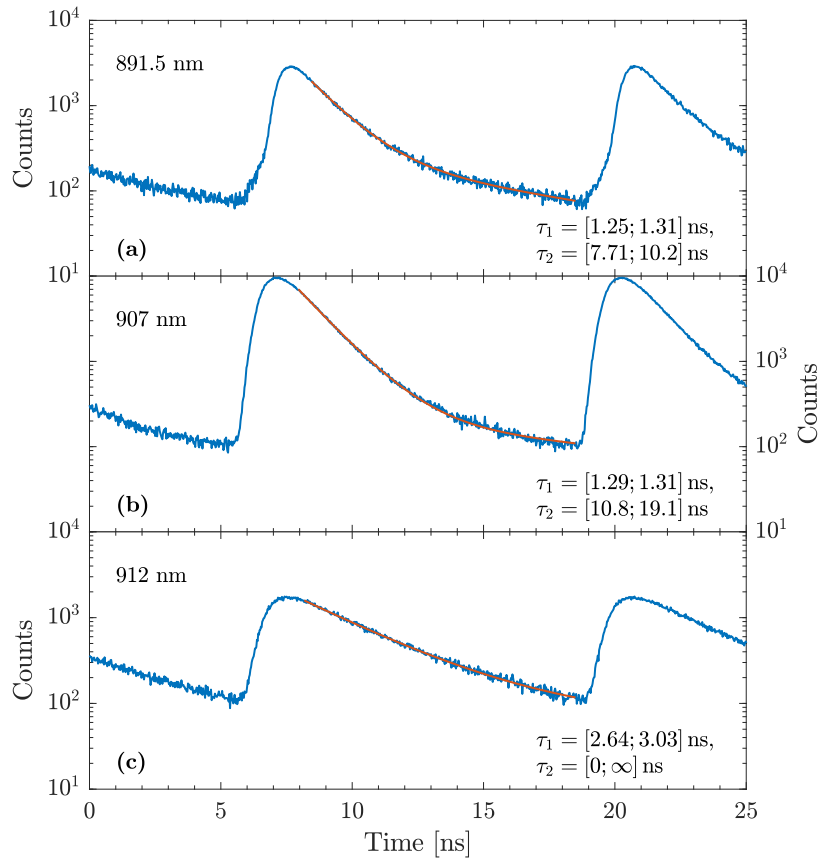


Fig. III.8 – Mesures de temps de vie des trois BQs. Les courbes bleues correspondent à l'évolution temporelle de l'intensité de photoluminescence des trois BQs QD1, QD2 et QD3 (de haut en bas). Les courbes oranges correspondent à des fits utilisant des fonctions bi-exponentielles décroissantes de temps caractéristiques τ_1 et τ_2 .

Calibration de la transmission de l'objectif de microscope. La figure III.9 présente la mesure de la transmission T_{obj} de l'objectif de microscope en fonction de l'angle de l'angle d'incidence $\tilde{\theta}$. Pour ce faire, l'objectif est éclairé par un faisceau collimaté de faible diamètre, qui peut être incliné d'un angle $\tilde{\theta}$ par rapport à l'axe optique. Ce faisceau est produit par une fibre optique clivée et un diaphragme (voir les SI de la Ref. [44] pour plus de détails). Comme

la transmission de l'objectif varie de plus de 30% sur toute la plage d'angles d'incidence, cette calibration est absolument nécessaire pour une analyse quantitative des cartes de champ lointain.

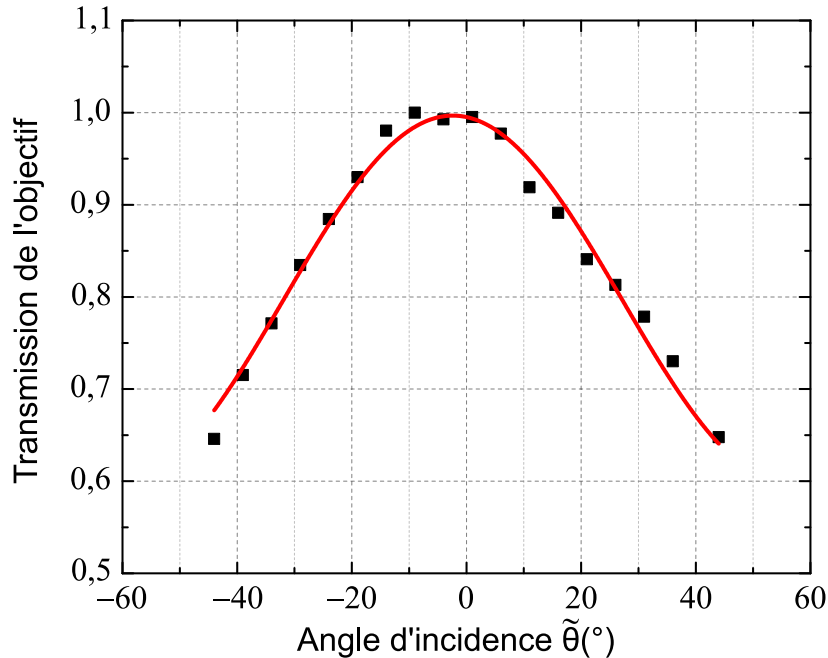


Fig. III.9 – Transmission de l'objectif de microscope. Intensité normalisée transmise par l'objectif T_{obj} en fonction de l'angle d'incidence $\tilde{\theta}$ du faisceau sur l'objectif de microscope (NA= 0,75). La courbe rouge en trait plein est un fit empirique utilisant une fonction sinusoidale plus une constante.

Champs lointains de BQs intégrées dans une structure strictement monomode. Cette section n'apparaît pas dans l'article mais permet d'observer une antenne photonique avec un comportement différent de celle étudiée précédemment. En effet, nous nous intéressons ici à une structure mono-mode où seul le mode fondamental HE_{11} est présent dans le fil. Cette antenne photonique possède un diamètre nominal au niveau des BQs $d_{nom} = 220$ nm (le diamètre nominal de la structure étudiée dans l'article est 240 nm). Son spectre de photoluminescence est présenté sur la figure III.10 (a). Nous avons mesuré la distribution angulaire de l'intensité en champ lointain de trois raies spectrales individuelles notées QD*1, QD*2 et QD*3 (figure III.10 (b)). Ces trois raies sont spectralement assez espacées pour considérer qu'elles sont associées à trois BQs différentes. On observe que les cartes en champ lointain de ces trois BQs ont toutes un profil gaussien permettant de conclure que le mode TE_{01} n'est pas présent dans ce fil.

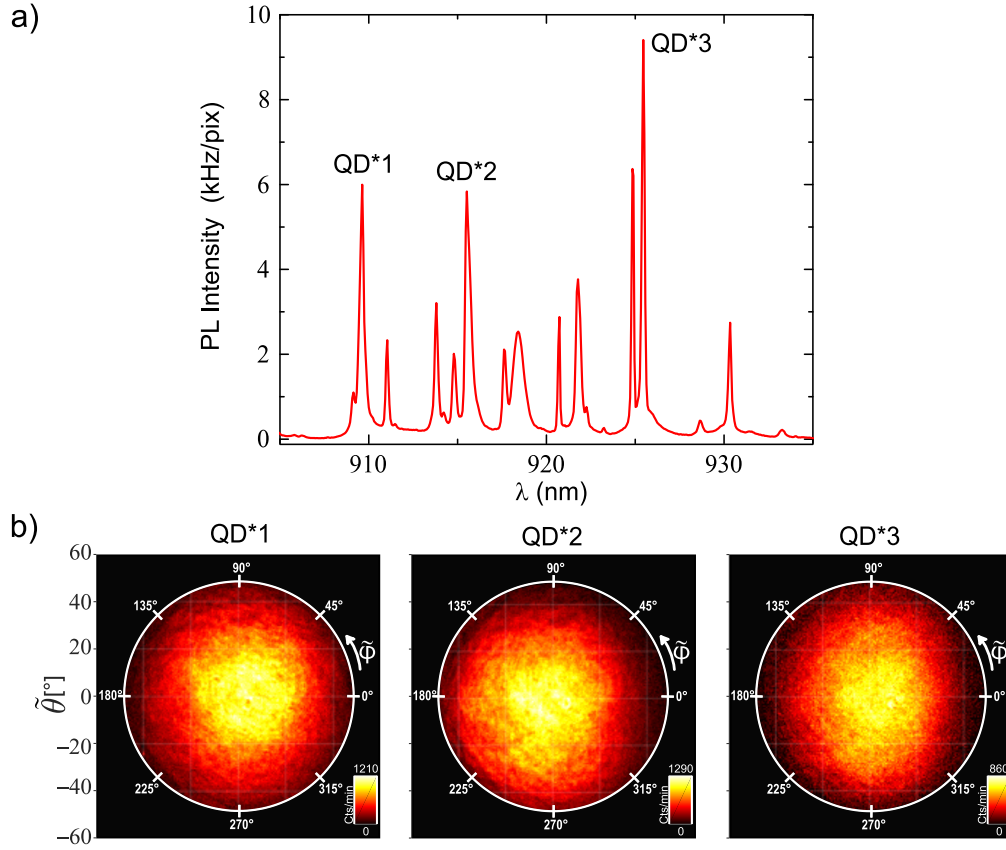


Fig. III.10 – Émission en champ lointain résolue en angle d’une antenne mono-mode. (a) Spectre de micro-photoluminescence de la structure sous excitation continue (CW) à la puissance $P_{\text{exc}} = 1 \mu\text{W}$, à la longueur d’onde $\lambda_{\text{exc}} = 825 \text{ nm}$ et à température cryogénique ($T = 5 \text{ K}$). Nous nous concentrons sur trois raies spectrales QD*1, QD*2 et QD*3 émettant aux longueurs d’ondes $\lambda_{\text{QD*1}} = 909,7 \text{ nm}$, $\lambda_{\text{QD*2}} = 915,4 \text{ nm}$ et $\lambda_{\text{QD*3}} = 925,5 \text{ nm}$, respectivement. (b) Mesure de la distribution angulaire de l’intensité en champ lointain de ces trois raies individuelles à la même puissance d’excitation. Pour chaque carte, le cercle blanc correspond à l’angle maximal de collection de l’objectif de microscope ($\tilde{\theta}_{\text{max}} = 49^\circ$). Les données sont corrigées de la réponse du microscope.

4 Conclusion

Pour conclure, nous avons développé et démontré une technique de localisation tout-optique (et donc non destructive) qui permet de localiser précisément une BQ dans la section du nanofil. En champ proche, l’émission simultanée dans le mode guidé fondamental (HE_{11} , deux fois dégénéré en polarisation) et le second mode guidé (TE_{01} , non dégénéré) donne naissance à une figure d’interférence qui dépend fortement de la position de la boîte. Cette figure d’interférence se retrouve dans le champ lointain, que l’on peut mesurer en microscopie de Fourier résolue spectralement. La comparaison entre les cartes en champ lointain expérimentales et les simulations numériques nous a permis de déterminer la position transverse des émetteurs au sein du fil avec une très bonne précision ($\pm 10 \text{ nm}$ sachant que le rayon typique des antennes est entre 100 et 150 nm). Pour pouvoir réaliser cette comparaison nous avons décrit l’émetteur (la BQ) comme la somme de dipôles optiques radial et orthoradial

mutuellement incohérent. Ceci est rigoureusement justifié pour le cas des excitons chargés sous excitation non-résonante et du bi-exciton neutre sans conditions particulières. Dans le cas de l'exciton neutre, cette description est valide uniquement si le spin-flip entre les états brillants de l'exciton est bien plus rapide que les temps de recombinaison radiative pour égaliser les populations de ces états. Cette technique de localisation est utilisable sur une large plage de diamètre ($0.20\lambda < d < 0.31\lambda$ dans le cas du GaAs) et est donc compatible avec les fils qui offrent un couplage optimal avec le mode guidé fondamental. En effet, dans la plage $0.21\lambda < d < 0.28\lambda$, plus de 90% de l'émission spontanée d'un émetteur sur l'axe est couplée au mode guidé fondamental HE_{11} .

Pour compléter cette étude il serait intéressant de la comparer avec la technique de localisation opto-mécanique développée récemment dans le groupe de J-P. Poizat [144]. Cette dernière exploite des vibrations mécaniques pour induire un stress oscillant dans la section du fil. En excitant un mode de flexion, on génère un stress oscillant qui fait osciller l'énergie d'émission de l'émetteur. L'amplitude du stress mécanique présente un fort gradient spatial transverse : l'amplitude de l'oscillation de l'énergie d'émission de la BQ permet alors de remonter à la distance à l'axe de l'émetteur. La phase de l'oscillation permet de savoir de quel côté se trouve la BQ. En exploitant le second mode de flexion, qui présente une direction d'oscillation perpendiculaire à celle du premier, on obtient une localisation en deux dimensions de l'émetteur. Dans le même ordre d'idées, on pourrait également comparer la localisation optique démontrée dans ce manuscrit à des expériences de détermination structurales, comme la tomographie TEM ou par diffraction X cohérente. Concernant ce dernier point, on peut citer des expériences préliminaires réalisées à l'ESRF dans le cadre d'une collaboration avec Vincent Favre-Nicolin.

Nous avons vu que la position de l'émetteur dans une antenne à fil photonique est importante, car elle conditionne la force de l'interaction lumière-matière et le couplage à certains canaux de décohérence. Nous avons pu vérifier le premier point expérimentalement. Comme attendu, on observe une augmentation du temps de vie excitonique lorsque l'émetteur se rapproche des flancs du fil. Ces mesures du temps de déclin des niveaux excitoniques sont néanmoins à approfondir. En effet, la détermination de ces temps se base sur un modèle simple (à double exponentielles), sans déconvoluer proprement le signal de la réponse de l'instrument et en prenant une géométrie circulaire du nanofil. Il serait intéressant d'utiliser l'analyse développée au cours du chapitre suivant pour permettre une corrélation plus précise entre la position de l'émetteur et les temps de déclin des niveaux excitoniques. A l'avenir, il serait également intéressant de corréler la position spatiale de l'émetteur avec sa largeur de raie. Pour optimiser cette dernière, il est préférable de recourir à une excitation résonante de la BQ.

Chapitre IV

Étude d'une source de décohérence : le spin-flip entre états excitoniques

Contents

1	Une structure photonique anisotrope pour révéler les processus de spin-flip	97
1.1	Processus de spin-flip de l'exciton neutre	97
1.2	Lien entre polarisation de l'émission excitonique et spin-flips dans une BQ anisotrope	98
1.3	Fil photonique à section elliptique : une structure photonique anisotrope	100
1.4	Boîte quantique étudiée	102
2	Modèle de l'émetteur et protocole de l'étude	104
2.1	Modèle	104
2.2	Protocole de l'étude	106
3	Émission du bi-exciton	108
3.1	Dynamique de recombinaison de l'état bi-excitonique	108
3.2	Degré de polarisation linéaire de l'émission bi-excitonique	110
3.3	Conclusion intermédiaire	112
4	Degré de polarisation linéaire de l'exciton	112
4.1	Expression théorique de \mathbf{L}_X	112
4.2	Influence de la puissance d'excitation à $T = 5$ K	115
4.3	Effet de la température	118
4.4	Conclusion intermédiaire	119
5	Temps de vie des états $H\rangle$ et $V\rangle$	119
5.1	Modèle analytique	119
5.2	Résultats expérimentaux	123
6	Conclusion	127

Ce chapitre a pour but de présenter une nouvelle méthode pour étudier les processus de spin-flip entre les états excitoniques hébergés par une boîte quantique neutre. En intégrant cet émetteur dans une structure photonique anisotrope, nous créons un déséquilibre entre les taux de recombinaison radiative des deux excitons brillants. Sous excitation non résonnante, nous allons voir que le degré de polarisation linéaire de la lumière émise par l'exciton est profondément affecté par les processus de spin-flip. Dans le régime des basses puissances (bien en dessous de la saturation de l'exciton), des mesures résolues en temps nous permettront de distinguer les contributions des spin-flips directs (entre les deux états brillants) des spin-flips indirects (entre états noirs et états brillants). Nous allons dans un premier temps introduire les phénomènes de spin-flips, et montrer avec un modèle simple le lien entre degré de polarisation linéaire de l'exciton et taux de spin-flip. Puis nous présenterons le modèle utilisé pour l'analyse de nos résultats expérimentaux. La méthode que nous avons développée s'articule autour de trois grands axes : i) L'analyse de la dynamique de recombinaison de l'état bi-excitonique, ainsi que la mesure de son degré de polarisation linéaire ; ii) l'étude du degré de polarisation de l'exciton en fonction de la puissance d'excitation ; iii) l'étude du temps de vie des deux états brillants de l'exciton neutre. Les trois dernières sections vont présenter les résultats obtenus sur une boîte quantique particulière en suivant ce protocole. Nous finirons ce chapitre en examinant les implications de notre étude pour le contrôle de l'émission spontanée dans des structures photoniques anisotropes, et pour la cohérence spectrale des sources de photons uniques utilisant comme émetteurs des boîtes quantiques.

1 Une structure photonique anisotrope pour révéler les processus de spin-flip

1.1 Processus de spin-flip de l'exciton neutre

Comme nous l'avons vu au cours du chapitre I à la section 1.4, les états excitoniques (à un seul exciton) d'une BQ neutre sont construits avec un état d'électron de la bande de conduction ($|\downarrow\rangle$ ou $|\uparrow\rangle$ correspondant à la projection de spin $-1/2$ et $1/2$ respectivement) et avec un état de la bande de trous lourds ($|\Downarrow\rangle$ ou $|\Uparrow\rangle$ correspondant à la projection du moment angulaire total $-3/2$ et $3/2$ respectivement). Quatre états de paire électron-trou peuvent alors être formés que l'on peut classer selon la somme des projections du moment angulaire total J_z^{eh} . Les excitons brillants $|\downarrow\uparrow\rangle$ et $|\uparrow\Downarrow\rangle$, avec $J_z^{eh} = \pm 1$, sont couplés à la lumière et peuvent alors se recombiner radiativement. Les excitons $|\Downarrow\Downarrow\rangle$ et $|\Uparrow\Uparrow\rangle$, avec $J_z^{eh} = \pm 2$, ne sont pas optiquement actifs. En raison des interactions d'échange et à cause de l'asymétrie du potentiel de confinement, l'exciton neutre des boîtes quantiques auto-assemblées InAs/GaAs possède une structure fine composée de deux états brillants $|H\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\downarrow\uparrow\rangle - |\uparrow\Downarrow\rangle)$ et $|V\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\downarrow\uparrow\rangle + |\uparrow\Downarrow\rangle)$ et deux états noirs $|D1\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Uparrow\Uparrow\rangle - |\Downarrow\Downarrow\rangle)$ et $|D2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\Uparrow\Uparrow\rangle + |\Downarrow\Downarrow\rangle)$ (voir figure I.11). Des mécanismes de relaxation peuvent mener au retournement du spin d'un électron ou du pseudo spin d'un trou (spin-flip dans la suite) limitant la durée de vie des états excitoniques. On distingue plusieurs types de spin-flips ; le spin-flip direct entre les deux états brillants où les spins de l'électron et du trou se "retournent" ; le spin-flip indirect entre un état noir et un état brillant où un seul spin se "retourne" et le spin-flip direct entre deux états noirs qui fait intervenir un double retournement.

Le temps de vie des états excitoniques est important pour la plupart des applications des BQs aux technologies quantiques de l'information. Ce temps de vie a tout d'abord été étudié dans un contexte où le spin de l'exciton est utilisé pour encoder de l'information (la BQ est alors le support d'un qubit de spin). On peut toutefois remarquer que dans le cas d'une BQ neutre, le temps de vie des excitons brillants est de toute façon limité par les processus radiatifs à des durées de l'ordre de la nanoseconde. Les BQs chargées avec un trou ou un électron résidant sont bien plus intéressantes dans ce contexte. Néanmoins, la relaxation de spin dans une BQ neutre reste importante pour l'émission d'états non-classiques de la lumière. En limitant la durée de vie des états brillants, ce mécanisme limite la cohérence spectrale d'une source de photons uniques [4]. Il vient aussi perturber la cascade radiative du bi-exciton, qui est exploitée pour émettre des paires de photons enchevêtrés en polarisation [6]. En règle générale, les spin-flips vers les états noirs sont un problème, car la BQ n'est plus optiquement active, ce qui équivaut à une perte de rendement radiatif. Enfin, de manière contre intuitive, la durée de vie et la cohérence des états noirs peut être importante pour l'émission de certains états non-classiques. C'est notamment le cas dans une démonstration récente, qui utilise l'exciton noir comme une mémoire qui permet de construire de l'enchevêtrement au sein d'un état photonique cluster [7].

Par rapport à des porteurs libres, le confinement des porteurs dans la BQ augmente grandement le temps de vie des spins. Toutefois, plusieurs mécanismes peuvent encore induire un spin-flip significatif. On peut citer le couplage aux phonons (acoustiques [164,165] ou optiques [166]), l'interaction avec des porteurs libres dans l'environnement proche de la

BQ [167] ou bien l'interaction avec les spins nucléaires par l'intermédiaire de l'interaction hyperfine [168]. Dans le cas particulier de l'interaction avec les phonons, qui est toujours présente, les taux de spin flips dépendent fortement de la température [169,170].

Durant les vingt dernières années, les travaux portant sur l'étude des processus de spin-flip ont révélé que ces processus dépendent fortement du type d'excitation employé pour exciter les boîtes quantiques. Plusieurs études ont montré que le mécanisme de relaxation était très ralenti pour des ensembles de boîtes quantiques InAs/GaAs sous excitation résonnante à température cryogénique. En effet des temps de l'ordre de 10 ns ont été mesurés sachant que le temps de vie radiatif est de l'ordre de 1 ns [171]. D'autres études sur des ensembles de boîtes sous excitation quasi-résonnante ont confirmé cette inhibition de la relaxation de spin utilisant des techniques pompe-sonde [172,173] ou écho de photons [174]. A l'inverse, une excitation non-résonnante peut accélérer considérablement les phénomènes de spin-flip. En effet I. Favero et al. ont montré en 2005 qu'une relaxation longitudinale de spin rapide avait lieu pour des boîtes uniques InAs sous excitation non résonnante [170], révélant un spin-flip très rapide ≤ 100 ps, et ce, même à faible température ($T \sim 4$ K). Outre la stratégie d'excitation utilisée, le spin-flip dépend également du système étudié. Des travaux publiés en 2002 [175] ont révélés un spin-flip rapide de l'ordre de 100 ps pour des boîtes quantiques aux défauts d'interface de puits quantiques GaAs/AlAs sous excitation résonnante. Ces boîtes quantiques se différencient des BQs auto-assemblées par leur faible confinement transverse, induisant un potentiel mélange entre trous lourds et trous légers. Et enfin, même pour des systèmes identiques sous des conditions expérimentales similaires, les processus de spin-flip peuvent se manifester de manière très différente d'un échantillon à un autre [161,176]. La grande variété des mécanismes possibles et la grande diversité des situations expérimentales motivent des études expérimentales supplémentaires.

1.2 Lien entre polarisation de l'émission excitonique et spin-flips dans une BQ anisotrope

Nous revenons ici sur l'étude de Favero et al. [170]. Cette dernière se focalise sur des BQs très diluées spatialement et qui sont très anisotropes. Les forces d'oscillateurs des transitions $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ (associées à l'émission de lumière polarisée linéairement π_H et caractérisées par le taux de recombinaison radiative Γ_H) et $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$ (polarisation orthogonale π_V et caractérisée par le taux Γ_V) sont donc très différentes, menant à $\Gamma_H \neq \Gamma_V$. Cette étude, conduite sur des BQs très particulières, nous permet de voir comment le taux de polarisation peut être utilisé pour révéler le taux de spin-flip. Elle constitue une source d'inspiration pour la méthode que nous proposons. Le degré de polarisation linéaire de l'émission excitonique L_X est défini par :

$$L_X = \frac{|I_{|H\rangle} - I_{|V\rangle}|}{I_{|H\rangle} + I_{|V\rangle}} \quad (\text{IV.1})$$

avec $I_{|H\rangle}$ et $I_{|V\rangle}$ les intensités de photoluminescence associées aux déclin radiatifs $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$. Nous nous plaçons dans le cadre du modèle simplifié présenté à la figure IV.1. Nous ne prenons pas en compte les états noirs. La puissance d'excitation est suffisamment faible pour que la population du bi-exciton soit négligeable. La BQ est majoritairement dans

son état fondamental. Les états brillants $|H\rangle$ et $|V\rangle$ sont peuplés avec un taux de photo-création P_H et P_V , et le spin-flip entre ces deux états est caractérisé par le taux γ_S . Dans le cas d'une excitation non-résonnante, les deux taux P_H et P_V deviennent égaux car il y a une perte de mémoire de la polarisation du laser excitateur : on pose $P_H = P_V = P$. De plus, nous négligeons les processus de recombinaison non radiative [12,13]. L'intensité totale associée au déclin $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ s'écrit $I_{|H\rangle} = \Gamma_H n_H$. De même, celle associée à $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$ s'écrit $I_{|V\rangle} = \Gamma_V n_V$, où n_H et n_V sont les populations des états brillants. On suppose dans la suite que ces deux signaux sont collectés avec la même efficacité.

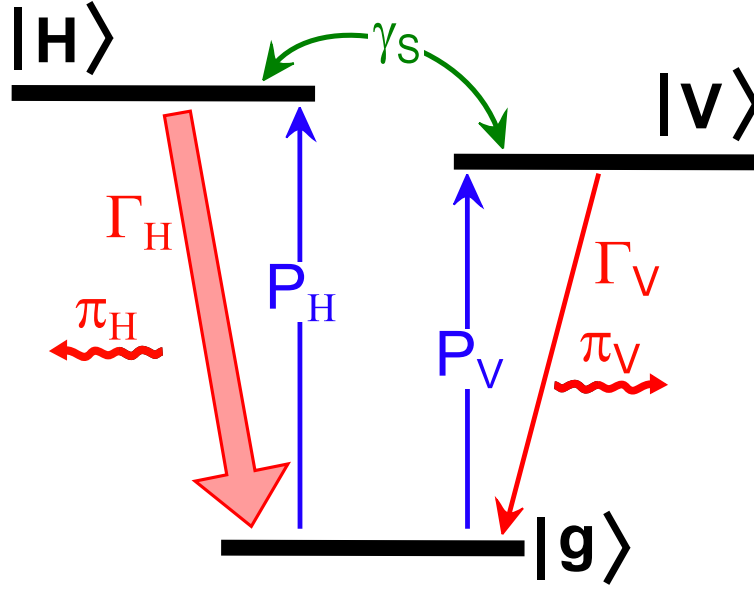


Fig. IV.1 – Spin-flips dans un modèle simple. Γ_H et Γ_V sont les taux de recombinaison radiative des deux états brillants $|H\rangle$ et $|V\rangle$, γ_S le taux de spin-flip entre ces deux états, P_H et P_V sont les taux de photo-création de ces états.

La résolution des équations de taux du système figurant sur la figure IV.1 nous donne :

$$L_X = \frac{\Gamma_H - \Gamma_V}{\Gamma_H + \Gamma_V} \frac{1}{1 + \Gamma_R/\gamma_S} , \quad (\text{IV.2})$$

avec $1/\Gamma_R = 1/\Gamma_H + 1/\Gamma_V$ la moyenne harmonique des taux de recombinaison radiative Γ_H et Γ_V .

Cette expression nous montre tout d'abord que L_X dépend de l'anisotropie des taux de recombinaison radiative : si $\Gamma_H = \Gamma_V$ alors $L_X = 0$. On remarque aussi que cette expression dépend du rapport entre le taux de spin-flip et le taux de déclin radiatif moyen. Dans le cas où la dynamique de spin-flip est très lente par rapport à celle de la recombinaison radiative ($\gamma_S \ll \Gamma_R$), nous obtenons $L_X = 0$: l'anisotropie de polarisation du signal de photoluminescence disparaît. Dans ce cas, les niveaux H et V se recombinent indépendamment, et ont le temps d'émettre un photon avant chaque nouvelle excitation. Alors que les populations stationnaires dépendent de Γ_H et Γ_V ($n_{H,V} = P/\Gamma_{H,V}$), les intensités de photoluminescence sont proportionnelles au taux de photocréation P ($I_{|H,V\rangle} \propto \Gamma_{H,V} n_{H,V} \propto P$). Ceci assure un équilibre parfait entre les intensités $I_{|H\rangle}$ et $I_{|V\rangle}$.

Lorsque le processus de spin-flip s'accélère, il induit un échange de population de plus en plus rapide entre les niveaux H et V et crée une compétition entre les deux canaux de recombinaison, menant à l'apparition d'une polarisation linéaire. Ce degré de polarisation atteint un maximum dans la limite où les spin-flips sont beaucoup plus rapides que la recombinaison radiative ($\gamma_S \gg \Gamma_R$), menant à $L_X = (\Gamma_H - \Gamma_V)/(\Gamma_H + \Gamma_V)$. Dans ce cas, les spin-flips égalisent les populations des niveaux H et V de sorte que leurs intensités de photoluminescence deviennent proportionnelles à Γ_H et Γ_V . Ce modèle simplifié nous permet de comprendre que le degré de polarisation linéaire est très sensible à la présence d'un processus de spin-flip.

En général, les BQs trouvées dans des zones denses ne présentent pas des anisotropies de force d'oscillateur très fortes [177,178]. Pour révéler les processus de spin-flip, nous proposons d'intégrer l'émetteur dans une structure photonique anisotrope. Cette structure va créer un fort déséquilibre entre Γ_H et Γ_V . Une mesure du taux de polarisation linéaire donne accès au taux de spin-flip. Nous verrons plus loin que les mesures de polarisation permettent aussi de déterminer les taux de spin-flips dans le régime des fortes puissances de pompage.

1.3 Fil photonique à section elliptique : une structure photonique anisotrope

Comme illustré sur la figure IV.2 la structure photonique anisotrope que nous avons retenue est une antenne à fil photonique présentant une base elliptique. Le nanofil est constitué de GaAs et possède une taille d'environ $3 \mu\text{m}$. Il repose sur un miroir $\text{SiO}_2\text{-Au}$. Le plan où se trouvent les boîtes quantiques est situé 80 nm au dessus de ce miroir. Comme nous l'avons vu à la section 3.2, l'ellipticité du fil est due à une légère anisotropie de la gravure RIE. Les axes principaux de cette ellipse sont notés x et y . Ils coïncident environ avec les axes de clivage facile de GaAs.

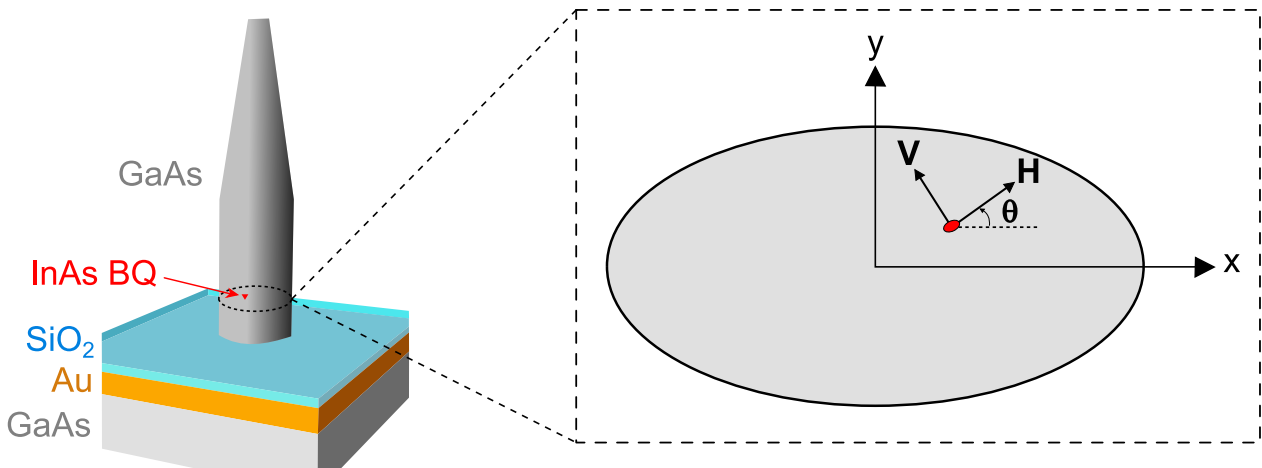


Fig. IV.2 – Fil photonique à section elliptique. Schéma d'une boîte quantique intégrée à une antenne à fil photonique à base elliptique. Les axes x et y sont les axes transverses principaux du fil. Les dipôles optiques de la BQ sont orientés selon les directions mutuellement orthogonales \vec{H} et \vec{V} . θ est l'angle entre la base associée aux dipôles de la BQ (H, V) et la base photonique (x, y).

Nous nous sommes concentrés sur des antennes relativement fines (diamètre nominal

inférieur à 300 nm) pour restreindre le nombre de modes optiques présents dans le guide. Nous avons effectué une analyse structurale de l'antenne photonique étudiée dans ce chapitre. Des images MEB de la structure selon ces deux axes sont présentées sur la figure IV.3.

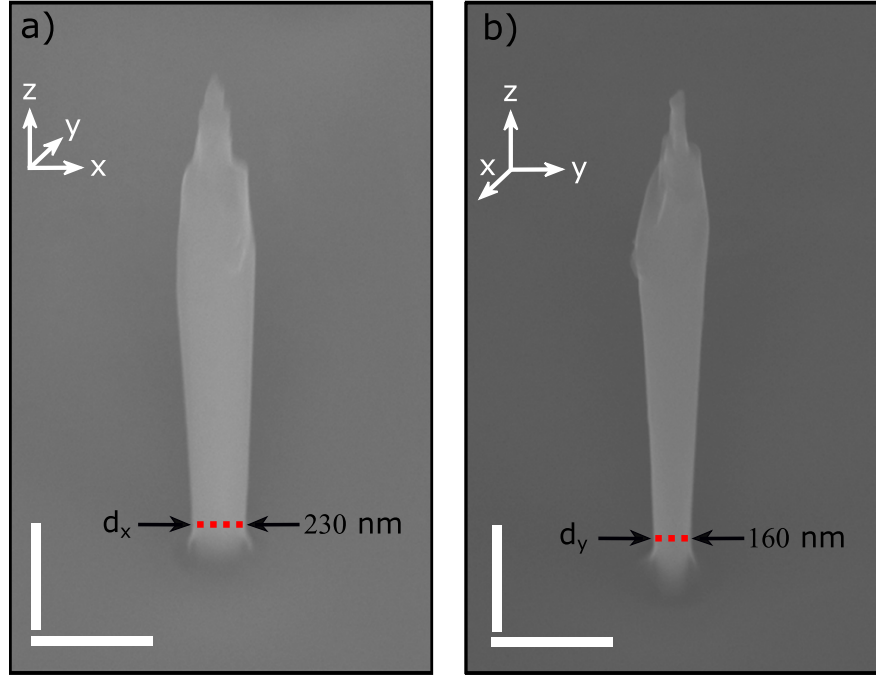


Fig. IV.3 – Image MEB de la structure étudiée. Images MEB tiltées à 70° de l'antenne photonique étudiée dans ce chapitre dont le diamètre nominal est 260 nm, selon les deux directions x (a) et y (b). Cette structure photonique provient du même échantillon utilisé dans ces autres études [13,40,55]. Le plan où se trouve les BQs est indiqué en pointillés rouges. Les barres d'échelle blanches correspondent à 500 nm.

On peut remarquer que cette structure est assez elliptique avec un diamètre selon x $d_x = 230$ nm et selon y $d_y = 160$ nm (rapport 2/3). De plus le taper supérieur présente une rugosité résiduelle.

D'un point de vue optique, cette structure photonique supporte un mode guidé fondamental M_x (M_y) polarisé localement selon la direction x (y). M_x et M_y sont équivalents aux modes HE_{11}^x et HE_{11}^y qui sont supportés par un fil à section circulaire comme nous l'avons vu au cours du chapitre II. Nous posons Γ_x et Γ_y les taux d'émission spontanée d'un dipôle aligné selon l'axe x et y respectivement. Du fait que x correspond au grand axe du fil, le mode M_x est mieux confiné dans le guide d'onde, menant à la hiérarchie $\Gamma_x > \Gamma_y$. Le déséquilibre entre ces deux taux peut être directement contrôlé en ajustant l'ellipticité de la section transverse de l'antenne [161]. Des simulations FDTD (acronyme anglais pour "méthode de différences finies dans le domaine temporel" ou finite differences in the time domain) montrent que l'ellipticité de la structure en question mène à une anisotropie photonique $\Gamma_x/\Gamma_y \approx 4$ pour un dipôle localisé sur l'axe du fil et émettant à la longueur d'onde $\lambda_{QD} = 930$ nm.

1.4 Boîte quantique étudiée

Nous avons réalisé notre étude sur une BQ unique particulière et intégrée dans l'antenne photonique illustrée sur la figure IV.3. Nous avons retenu une boîte quantique neutre avec des raies spectrales excitonique et bi-excitonique clairement identifiables, spectralement assez séparées l'une par rapport à l'autre et spectralement bien isolées des autres boîtes quantiques de la même structure pour pouvoir effectuer des mesures sur raies uniques pour toutes les gammes de puissance d'excitation souhaitées. Le spectre de photoluminescence de l'antenne photonique de la figure IV.3 est visible sur la figure IV.4 a). On peut y voir un ensemble de raies correspondant à la photoluminescence de plusieurs boîtes quantiques. Nous nous sommes concentré sur deux raies notées X et XX respectivement à la longueur d'onde $\lambda_X = 921,44$ nm et $\lambda_{XX} = 920,46$ nm.

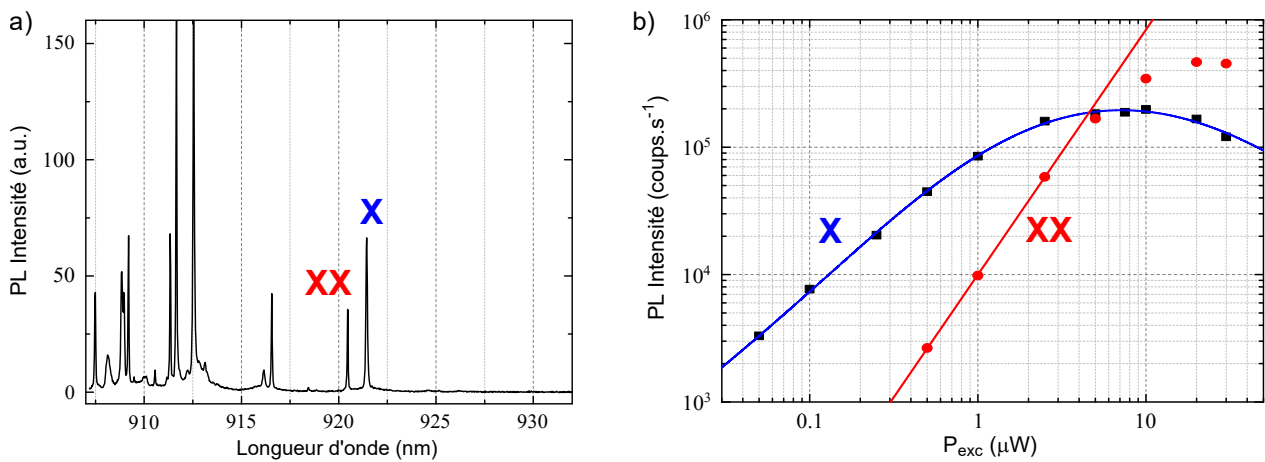


Fig. IV.4 – Spectre de photoluminescence de l'antenne photonique étudiée. Mesures effectuées sous excitation continue CW à la longueur d'onde $\lambda_{\text{exc}} = 835$ nm et à température cryogénique ($T = 5$ K). a) Spectre CCD de photoluminescence de l'antenne photonique étudiée à la puissance $P_{\text{exc}} = 2,5 \mu\text{W}$. La raie associée à la recombinaison de l'exciton de la boîte quantique choisie est notée X ($\lambda_X = 921,44$ nm) et celle liée au bi-exciton est notée XX ($\lambda_{XX} = 920,46$ nm). b) Intensité de photoluminescence intégrée (via une Photo diode à avalanche APD) en fonction de la puissance d'excitation P_{exc} pour la raie X (carrés noirs) et XX (points rouges). La courbe bleue en trait plein est un fit basé sur le modèle décrit sur la figure IV.6. Ce modèle ne permet pas de décrire correctement I_{XX} à haute puissance d'excitation car il faudrait tenir compte des niveaux excitoniques d'ordre supérieur. Pour cette raison, nous avons effectué un simple fit linéaire sur les premiers points expérimentaux (courbe rouge).

La proximité spectrale de ces deux raies (écart $\Delta\lambda_{X-XX} \approx 1$ nm) est un premier indice que ces deux raies sont associées à la recombinaison radiative de complexes excitoniques d'une même boîte quantique. Néanmoins il est nécessaire d'effectuer des mesures complémentaires pour vérifier cette hypothèse. La première est la mesure des intensités intégrées I_X et I_{XX} de ces deux raies en fonction de la puissance d'excitation. Le résultat de cette mesure est donné sur la figure IV.4 b). L'intensité est intégrée sur la cellule d'une photo-diode à avalanche (APD pour Avalanche Photo Diode en anglais) sous excitation continue et à $T = 5$ K. Les premiers points expérimentaux nous révèlent que $\log(I_X) \sim 1.09 \times \log(P_{\text{exc}})$ et $\log(I_{XX}) \sim 1.90 \times \log(P_{\text{exc}})$. Pour prouver définitivement que les raies X et XX sont associées à la recombinaison

d'un état mono-excitonique et bi-excitoniques d'une BQ neutre, nous avons étudié la structure fine de ces raies.

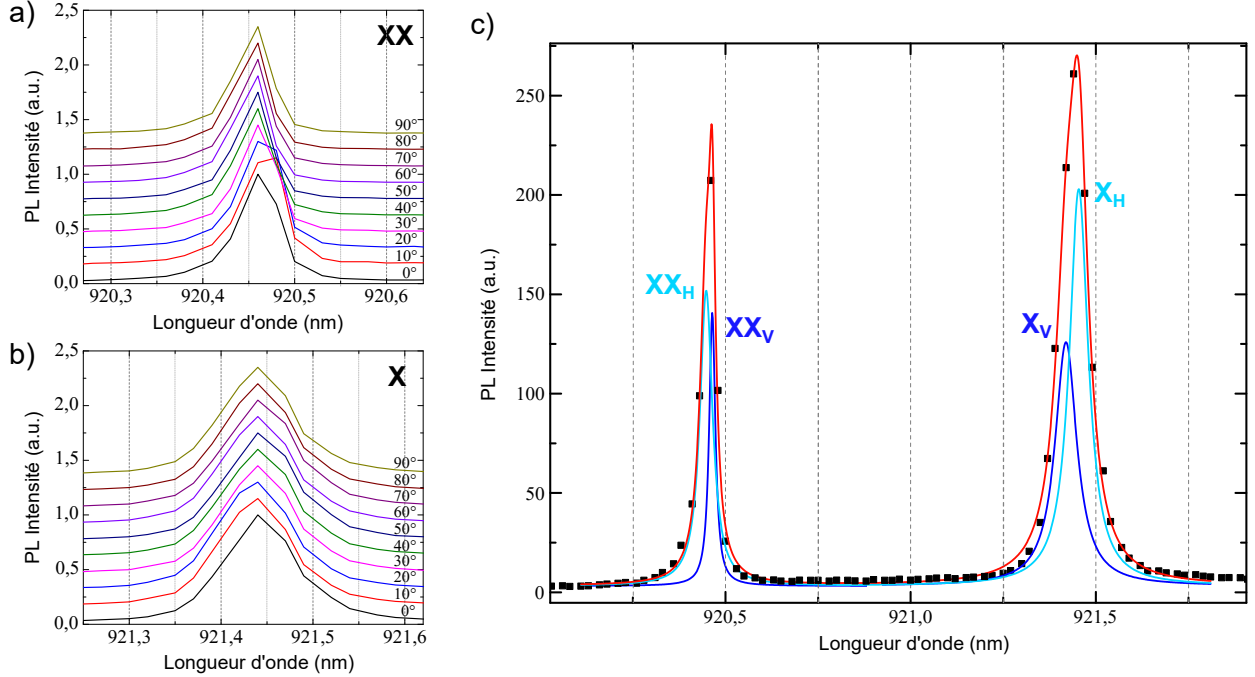


Fig. IV.5 – Structure fine des raies X et XX. a) Spectres normalisés de la raie bi-excitonique XX pour différentes positions angulaires de la lame $\lambda/2$. b) Idem pour la raie excitonique X. c) Spectre de photoluminescence pour une position angulaire de la lame de 40° . La courbe rouge est le résultat d'un fit à quatre lorentziennes pour caractériser la structure fine des deux raies excitoniques. La raie X est composée d'une paire de raies X_H et X_V aux longueurs d'ondes $\lambda_{X_H} \approx 921,45$ nm et $\lambda_{X_V} \approx 921,42$ nm. De la même manière, la raie XX est constituée de deux raies XX_H et XX_V aux longueurs d'ondes $\lambda_{XX_H} \approx 920,44$ nm et $\lambda_{XX_V} \approx 920,47$ nm. Spectres réalisés sous excitation continue CW à la longueur d'onde $\lambda_{exc} = 835$ nm, à la puissance $P_{exc} = 2,5 \mu W$ et à température cryogénique ($T = 5$ K).

La résolution spectrale de notre banc optique n'est pas assez bonne pour pouvoir observer directement le dédoublement des raies associé à la structure fine des complexes excitoniques neutres. Néanmoins il est possible d'y avoir accès en effectuant des mesures de spectres résolues en polarisation. Comme nous l'avons déjà fait au cours du chapitre III, nous plaçons un couple polariseur/lame $\lambda/2$ sur le trajet optique avant l'entrée du spectromètre. Le polariseur a une position angulaire fixe ne laissant passer la lumière que selon une seule direction de polarisation alors que la lame $\lambda/2$ (précédent le polariseur) permet de faire tourner la direction de la polarisation de la lumière incidente. Sur la figure IV.5 a) et b) nous pouvons voir les raies XX et X selon plusieurs positions angulaires de la lame $\lambda/2$. Pour les deux raies nous observons un décalage périodiques des raies avec l'angle de la lame, nous assurant que les complexes excitoniques sont neutres. En effet les excitons chargés ne présentent pas de structure fine sous champ magnétique nul. De plus le décalage de XX est anti-symétrique par rapport à celui de X. Ceci est un indice fort sur la parenté commune de ces deux raies. Nous avons alors suffisamment de preuves expérimentales pour considérer que la raie X est associée à la recombinaison de l'exciton neutre et que la raie XX est associée au bi-exciton d'une même

boîte quantique. Pour une position angulaire de la lame $\lambda/2$ donnée, nous avons effectué des fits à double lorentzienne pour déterminer plus précisément la structure fine de chaque raie. Ce fit est visible sur la figure IV.5 c) et nous permet d'obtenir l'écart en énergie des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$, $\Delta_{HV} \approx 40 \mu\text{eV}$, une valeur typique pour une BQ InAs/GaAs auto-assemblée [85].

2 Modèle de l'émetteur et protocole de l'étude

2.1 Modèle

L'émetteur. La figure IV.6 présente les états associés aux complexes excitoniques de la couche s d'une boîte quantique neutre. Les quatre états $|XX\rangle$, $|H\rangle$, $|V\rangle$ et $|g\rangle$ forment une structure photonique "en diamant" connectée par des transitions radiatives. Les transitions optiques $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ présentent un dipôle aligné selon la direction \vec{H} , alors que le dipôle associé aux transitions $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$ est aligné selon la direction \vec{V} . \vec{H} et \vec{V} sont orthogonaux et nous supposons que toutes les transitions possèdent des forces d'oscillateur identiques. Cependant, comme nous l'avons déjà évoqué, les taux Γ_H et Γ_V peuvent prendre des valeurs très différentes du fait de l'anisotropie photonique de la structure dans laquelle la BQ est intégrée. Le niveau bi-excitonique se recombine avec un taux d'émission spontanée $\Gamma_{XX} = \Gamma_H + \Gamma_V$.

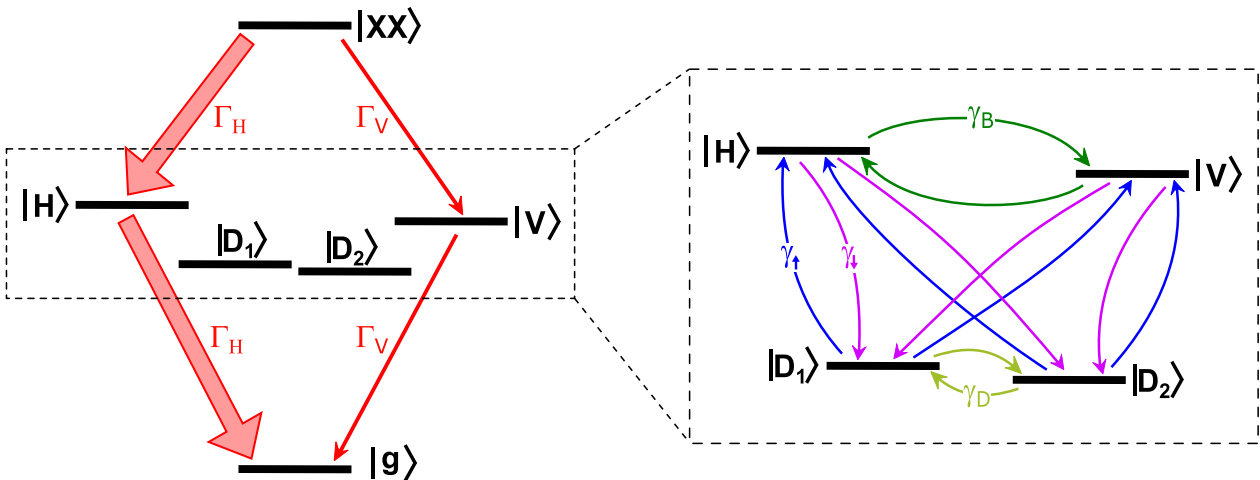


Fig. IV.6 – Modèle excitonique complet. Schéma de population de niveaux utilisé pour cette étude. A gauche : Modèle à 6 niveaux d'une boîte quantique neutre incluant le niveau fondamental $|g\rangle$ (vide d'exciton), les quatre niveaux de l'exciton $|H\rangle$, $|V\rangle$ (excitons brillants), $|D_1\rangle$ et $|D_2\rangle$ (excitons noirs) et le niveau bi-excitonique $|XX\rangle$. L'anisotropie photonique implique $\Gamma_H > \Gamma_V$. A droite : zoom sur la structure fine de l'exciton neutre et sur les différents chemins de spin-flip.

Comme illustré dans l'encadré de la figure IV.6, les quatre états excitoniques peuvent être connectés par des processus non radiatifs de spin-flip. Pour simplifier l'analyse, nous formulons plusieurs hypothèses : (i) Les transitions associées au spin-flip direct entre les deux états brillants, $|H\rangle \rightarrow |V\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |H\rangle$, ont le même taux γ_b . (ii) De même, le spin-flip direct entre les deux états noirs, $|D_1\rangle$ et $|D_2\rangle$ est caractérisé par un unique taux γ_d . (iii) Les quatre canaux de conversion des états noirs vers les états brillants sont décrits avec un seul taux γ_t .

(iv) Il en va de même pour les quatre canaux des états brillants vers les états noirs qui sont caractérisés par un unique taux γ_{\downarrow} . Ces hypothèses sont valides si les écarts en énergie entre les deux états brillants Δ_{HV} et celui entre les deux états noirs Δ_{DD} sont suffisamment petits devant l'énergie thermique $k_B T$ (k_B est la constante de Boltzman et T la température). Nous avons vu dans les paragraphes précédents que $\Delta_{\text{HV}} = 40 \mu\text{eV}$, ce qui correspond à une énergie thermique d'activation $k_B \times 0,5 \text{ K}$. A $T = 5 \text{ K}$, cela correspond à une différence de moins de 10% entre les taux des transitions $|H\rangle \rightarrow |V\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |H\rangle$ dans l'hypothèse où les taux sont gouvernés par une loi d'activation thermique.

La structure photonique. Comme nous l'avons évoqué dans la section 1.3, l'antenne photonique dans laquelle est intégrée la BQ possède deux modes M_x et M_y polarisés localement selon les directions x et y . Cette polarisation est également transmise en champ lointain (voir chapitre III pour plus détails). Même si l'extrémité supérieure n'est pas parfaitement définie, nous considérons que ces deux modes sont collectés de la même manière. Nous avons vu dans les chapitres précédents que pour des fils cylindriques avec des diamètres supérieurs à environ 200 nm, le mode TE_{01} , qui n'est pas polarisé en champ lointain, doit être pris en compte. Cependant pour des fils très elliptiques tel que celui présenté sur la figure IV.3, où une des dimensions transverses est très petite, la contribution de ce mode peut être négligé. En effet, des simulations obtenues avec le logiciel de simulation électromagnétique FEMSIM de Synopsis nous ont montré que ce mode est principalement délocalisé à l'extérieur de la structure. Le résultat de ces simulations est présenté sur la figure IV.7. Nous pouvons y observer les cartes d'amplitude du champ électrique transverse associé aux modes M_x , M_y et TE_{01} . De plus nous avons effectué des mesures en champ lointain nous montrant un profil à symétrie cylindrique, allant dans le sens de l'absence de ce mode au sein du fil étudié.

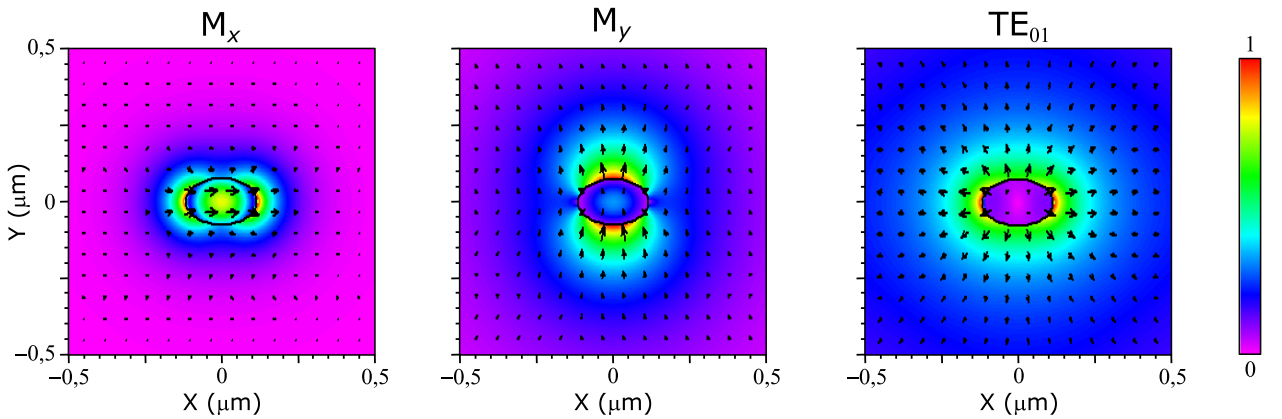


Fig. IV.7 – Cartes du champ électrique transverse associé aux premiers modes guidés d'une antenne à base elliptique. De gauche à droite, cartes de l'amplitude normalisée du champ électrique transverse associé aux modes M_x , M_y et TE_{01} . Les flèches noires correspondent à la direction de polarisation locale du champ électrique. La circonférence du fil elliptique est représentée en trait plein noir. Le calcul est réalisé tenant compte de la géométrie du fil étudié ($d_x = 230 \text{ nm}$ et $d_y = 160 \text{ nm}$). Ces simulations ont été réalisées par J-M. Gérard.

Taux d'émission spontanée. En règle générale, les axes principaux du fil x et y suivent les axes cristallographiques $[110]$ et $[1\bar{1}0]$ du cristal de GaAs (qui sont également les axes de clivage facile du cristal). Les axes \vec{H} et \vec{V} de la BQ de nos boîtes sont aussi alignés selon ces axes [178]. Pour tenir compte d'un éventuel décalage angulaire entre les axes photoniques et ceux de la BQ, nous introduisons θ , l'angle entre \vec{H} et x (voir l'encadré à droite de la figure IV.2). Les taux d'émission spontanée des transitions excitoniques et bi-excitonique sont alors donnés par les expressions suivantes :

- *Transitions excitoniques :*

$$\Gamma_H = \cos^2(\theta)\Gamma_x + \sin^2(\theta)\Gamma_y \quad (\text{IV.3})$$

$$\Gamma_V = \sin^2(\theta)\Gamma_x + \cos^2(\theta)\Gamma_y. \quad (\text{IV.4})$$

Nous pouvons réécrire ces relations de la manière équivalente :

$$\Gamma_H + \Gamma_V = \Gamma_x + \Gamma_y \quad (\text{IV.5})$$

$$\Gamma_H - \Gamma_V = \cos(2\theta)(\Gamma_x - \Gamma_y). \quad (\text{IV.6})$$

- *Émission du bi-exciton :* Le niveau du bi-exciton $|XX\rangle$ se recombine radiativement selon les deux chemins $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$, avec le taux :

$$\Gamma_{XX} = \Gamma_H + \Gamma_V = \Gamma_x + \Gamma_y. \quad (\text{IV.7})$$

On voit que pour interpréter les expériences, il faut connaître les paramètres Γ_x , Γ_y et θ . La méthode utilisée pour déterminer expérimentalement ces paramètres est décrite dans la section suivante.

2.2 Protocole de l'étude

Le but de cette étude est de déterminer les taux des processus de spin-flips à l'œuvre dans la BQ sélectionnée. Pour ce faire, il faut aussi déterminer les paramètres Γ_x , Γ_y et θ . Comme la méthode que nous avons développée met en jeu beaucoup de mesures différentes, nous résumons son principe dans cette section. Les résultats théoriques détaillés et les résultats expérimentaux seront présentés dans les sections suivantes. En résumé, nous combinons des mesures de polarisation et des mesures de déclin de la photoluminescence résolu en temps. On étudie tout d'abord l'émission du bi-exciton, qui permet de déterminer expérimentalement les paramètres de la structure photonique Γ_x et Γ_y . Les mesures sur l'émission excitonique permettent de déterminer l'angle θ et les différents taux de spin-flip. Ce protocole de mesure se présente de la manière suivante :

- *Mesure du temps de vie de l'état bi-excitonique $|XX\rangle$.*

Cette mesure est réalisée sous excitation pulsée. Comme nous l'avons vu précédemment, cet état se recombine radiativement selon les deux chemins $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$, avec le taux :

$$\Gamma_{XX} = \Gamma_H + \Gamma_V = \Gamma_x + \Gamma_y. \quad (\text{IV.8})$$

- *Mesure du taux de polarisation linéaire de l'émission bi-excitonique $|XX\rangle$.*

Dans cette expérience, la boîte quantique est excitée en continu. On collecte simultanément les photons des recombinaisons radiatives $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$. De la même manière

que précédemment (mesures spectrales de la structure fine, figure IV.5), nous utilisons un couple lame $\lambda/2$ et polariseur sur le trajet optique. Cette technique est équivalente à une analyse de polarisation utilisant un polariseur dont l'angle est 2α , et nous donne accès au degré de polarisation linéaire explicité dans les sections précédentes tel que :

$$L_{XX} = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}. \quad (\text{IV.9})$$

avec I_{\max} et I_{\min} le maximum et le minimum d'intensité après le polariseur.

Comme les modes M_x et M_y présentent des polarisations orthogonales en champ lointain, I_{\max} et I_{\min} sont obtenues lorsque le polariseur est aligné le long des axes photoniques x et y . Sans impact pour la suite, on pose arbitrairement que x est l'axe photonique fort, c'est-à-dire que $\Gamma_x > \Gamma_y$. Les photons issus des déclin $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$ possèdent des énergies différentes, on peut donc sommer leurs contributions aux intensités I_{\max} et I_{\min} de manière incohérente :

$$I_{\max} \propto \bar{n}_{XX} [\cos^2(\theta)\Gamma_x + \sin^2(\theta)\Gamma_x] \quad (\text{IV.10})$$

$$I_{\min} \propto \bar{n}_{XX} [\sin^2(\theta)\Gamma_y + \cos^2(\theta)\Gamma_y], \quad (\text{IV.11})$$

avec \bar{n}_{XX} la population en régime permanent du niveau $|XX\rangle$. On obtient alors :

$$L_{XX} = \frac{\Gamma_x - \Gamma_y}{\Gamma_x + \Gamma_y}. \quad (\text{IV.12})$$

En combinant avec la mesure du temps de vie du bi-exciton nous obtenons alors :

$$\Gamma_x = \Gamma_{XX} \frac{1 + L_{XX}}{2}, \quad (\text{IV.13})$$

$$\Gamma_y = \Gamma_{XX} \frac{1 - L_{XX}}{2}. \quad (\text{IV.14})$$

- *Mesure du taux de polarisation linéaire de l'émission excitonique $|X\rangle$.*

Ici, la discussion est similaire au cas du bi-exciton, excepté le fait que les modes optiques M_x et M_y sont nourris par les transitions radiatives $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$. I_{\max} et I_{\min} sont alors données par :

$$I_{\max} \propto \bar{n}_H \cos^2(\theta)\Gamma_x + \bar{n}_V \sin^2(\theta)\Gamma_x \quad (\text{IV.15})$$

$$I_{\min} \propto \bar{n}_H \sin^2(\theta)\Gamma_y + \bar{n}_V \cos^2(\theta)\Gamma_y, \quad (\text{IV.16})$$

avec \bar{n}_H et \bar{n}_V les populations en régime permanent des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$. L'expression générale du degré de polarisation linéaire L_X est :

$$L_X = \frac{\bar{n}_H [\cos^2(\theta)\Gamma_x - \sin^2(\theta)\Gamma_y] + \bar{n}_V [\sin^2(\theta)\Gamma_x - \cos^2(\theta)\Gamma_y]}{\bar{n}_H\Gamma_H + \bar{n}_V\Gamma_V}. \quad (\text{IV.17})$$

Cette expression montre que L_X dépend des populations à l'équilibre \bar{n}_H et \bar{n}_V . Ces populations étant fortement influencées par les processus de spin-flip ("brillant-brillant" et "noirs-brillants"), une mesure de L_X permet d'obtenir une information sur les processus de

spin-flip. Ces mesures de polarisation peuvent être conduites dans les régimes de faible et de forte puissances d'excitation, jusqu'à la saturation de l'émission excitonique. Néanmoins ces mesures ne nous permettent pas de différencier les contributions du spin-flip "brillant-brillant" du spin-flip "noirs-brillants". Ceci est possible dans la limite des basses puissances d'excitation grâce à des mesures de temps de vie. Ces dernières permettent également de déterminer l'angle θ .

- *Mesure du temps de vie des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$.*

Ces mesures de temps de vie sont également résolues en polarisation. On se concentre sur deux situations, lorsque le polariseur est aligné le long des axes photoniques principaux x et y . Les intensités correspondant à ces deux directions $I_x(t)$ et $I_y(t)$ mélangent les contributions des recombinaisons radiatives $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ et $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$ tel que :

$$I_x(t) \propto \Gamma_x [\cos^2(\theta)n_H(t) + \sin^2(\theta)n_V(t)] \quad (\text{IV.18})$$

$$I_y(t) \propto \Gamma_y [\sin^2(\theta)n_H(t) + \cos^2(\theta)n_V(t)]. \quad (\text{IV.19})$$

avec $n_H(t)$ et $n_V(t)$ les populations des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$. Comme pour le cas du régime permanent, la résolution analytique de la dépendance temporelle des populations $n_H(t)$ et $n_V(t)$ n'est pas triviale. Nous l'étudierons plus en détails dans les sections suivantes. On verra que ces populations déclinent avec trois taux caractéristiques Γ_1 , Γ_2 et Γ_3 , dépendant des taux de recombinaisons radiatives Γ_H et Γ_V mais aussi des différents taux de spin-flip γ_b , γ_\uparrow et γ_\downarrow . Nous effectuerons un ajustement numérique pour analyser les données expérimentales et pouvoir connaître les trois taux Γ_1 , Γ_2 et Γ_3 . Nous verrons également que lorsque les processus de spin-flip sont lents, la différence $\Gamma_1 - \Gamma_2$ est égale en première approximation à $\Gamma_H - \Gamma_V$, menant à la connaissance de :

$$\cos(2\theta) = \frac{1}{L_{XX}} \frac{\Gamma_H - \Gamma_V}{\Gamma_{XX}}, \quad (\text{IV.20})$$

et donc aux valeurs de Γ_H et Γ_V . L'analyse de ces courbes de temps de vie permet aussi de séparer les contributions des spin-flips "brillants-brillants" et "noirs-brillants".

Nous allons maintenant présenter l'ensemble des résultats obtenus sur la boîte quantique choisie (figure IV.4). Nous étudierons en particulier l'impact de la puissance d'excitation et celui de la température sur les différents taux de spin-flip.

3 Émission du bi-exciton

Cette section est dédiée à l'étude de l'émission du bi-exciton. Nous présentons tout d'abord des mesures de déclin de la photo-luminescence résolues en temps (sous excitation impulsionnelle). Nous présentons ensuite une analyse de la polarisation (sous excitation continue).

3.1 Dynamique de recombinaison de l'état bi-excitonique

Méthode de la mesure. Nous nous plaçons ici dans le régime d'excitation impulsionnelle. Le laser Ti :Saphir est réglé pour émettre des impulsions lasers dont la largeur temporelle à mi-hauteur est égale à 0,2 ps, à une période de 13,2 ns (fréquence de 76 MHz) et à la

longueur d'onde $\lambda_{\text{exc}} = 835$ nm. La lumière émise par l'état bi-excitonique est ensuite filtrée par un monochromateur à réseau (1200 traits. mm^{-1}), puis détectée par une photo-diode à avalanche (APD) en silicium.

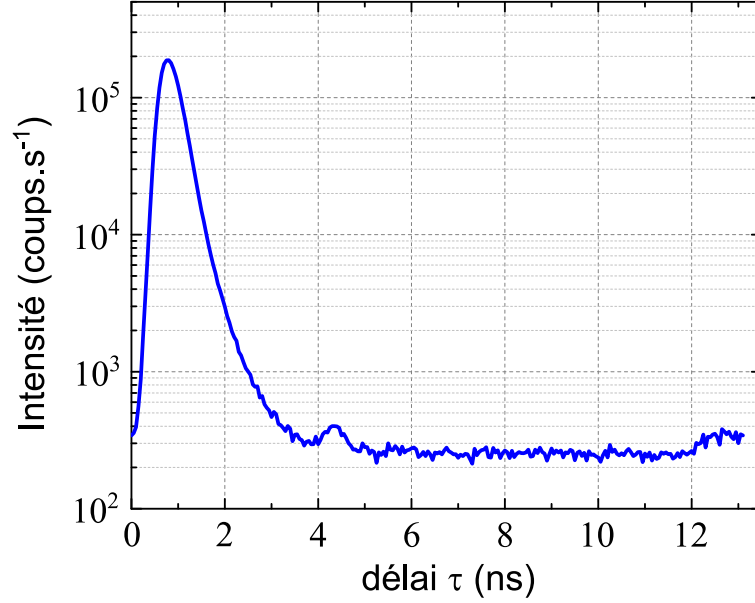


Fig. IV.8 – Réponse impulsionnelle du dispositif de détection. Évolution temporelle de l'intensité mesurée par l'APD après une impulsion laser à la longueur d'onde $\lambda = 920$ nm.

Nous avons mesuré la réponse impulsionnelle $Rep(t)$ du dispositif de détection à l'aide d'une impulsion laser atténuée. Cette réponse est visible sur la figure IV.8. La largeur à mi-hauteur de cette courbe nous donne une résolution temporelle de l'ordre de 400 ps. Sachant que le temps de déclin typique pour les boîtes quantiques InAs/GaAs est de l'ordre de la nano-seconde [13], il est important de déconvoluer les données expérimentales de la réponse de l'instrument (ou de manière équivalente, de convoluer la fonction de fit théorique avec la réponse de l'instrument, ce qui est plus facile à réaliser numériquement).

Résultats expérimentaux. La figure IV.9 présente la mesure de temps de vie, à $T = 5$ K, de l'état $|XX\rangle$, c'est-à-dire l'évolution de $I_{XX}(t)$. Nous nous sommes placés à une puissance $P_{\text{exc}} = 600$ nW lors de cette mesure. A cette puissance, I_{XX} vaut moins de 10% de l'intensité à saturation, nous permettant de négliger les états d'ordre supérieur. Considérant le modèle utilisé dans ce chapitre (voir figure IV.6), la dépendance temporelle de la population du niveau bi-excitonique $n_{XX}(t)$ suit une décroissance mono-exponentielle. L'intensité associée à l'émission bi-excitonique (somme des transitions $|XX\rangle \rightarrow |H\rangle$ et $|XX\rangle \rightarrow |V\rangle$) est alors décrite par :

$$I_{XX}(t) \propto e^{-(\Gamma_H + \Gamma_V)t}. \quad (\text{IV.21})$$

Nous décrivons alors les données expérimentales par la fonction suivante (courbe rouge sur la figure IV.9) :

$$F_{XX}(t) = (I_0 e^{-\Gamma t} + y_0) \otimes Rep(t), \quad (\text{IV.22})$$

avec I_0 , y_0 et Γ les paramètres libres du fit. I_0 est une constante de proportionnalité qui n'a pas d'importance pour la suite. y_0 correspond au bruit d'obscurité de la mesure. $Rep(t)$ est la

réponse de l'instrument. Ce fit a été réalisé numériquement avec le logiciel Matlab®. Il nous permet alors de trouver :

$$\Gamma_{XX} = \Gamma_H + \Gamma_V = 1,30 \pm 0,01 \text{ ns}^{-1}. \quad (\text{IV.23})$$

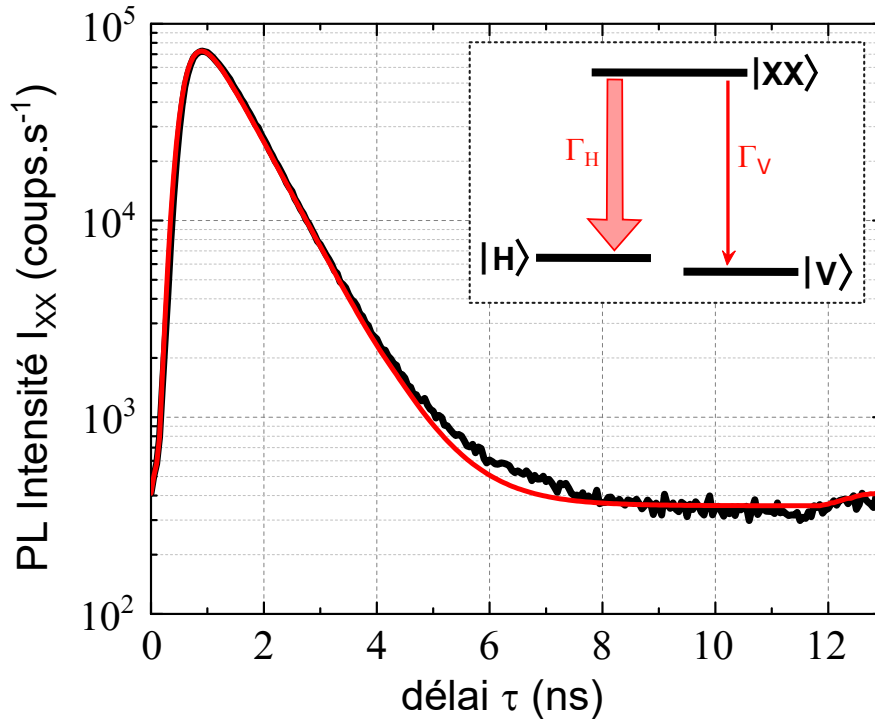


Fig. IV.9 – Dynamique de recombinaison radiative de l'état $|XX\rangle$. Évolution temporelle de l'intensité de photoluminescence de l'état bi-excitonique I_{XX} (puissance moyenne d'excitation $P_{\text{exc}} = 600 \text{ nW}$, température $T = 5 \text{ K}$). La courbe noire correspond aux données expérimentales. La courbe rouge est un fit par une mono-exponentielle convoluée avec la réponse de l'instrument. L'encadré en haut à droite illustre le modèle de recombinaison radiative du bi-exciton.

3.2 Degré de polarisation linéaire de l'émission bi-excitonique

Méthode de la mesure. Nous nous plaçons ici dans le régime d'excitation continue. La longueur d'onde d'excitation du laser est toujours $\lambda_{\text{exc}} = 835 \text{ nm}$. Nous plaçons un couple lame $\lambda/2$ et polariseur sur le trajet optique pour analyser la polarisation de l'émission. De la même manière que pour la mesure résolue en temps, la lumière émise par l'état bi-excitonique est filtrée par le monochromateur à réseau, puis détectée par une photo-diode à avalanche (APD) en silicium. L'APD est utilisée ici pour intégrer spectralement le signal associé à l'émission bi-excitonique.

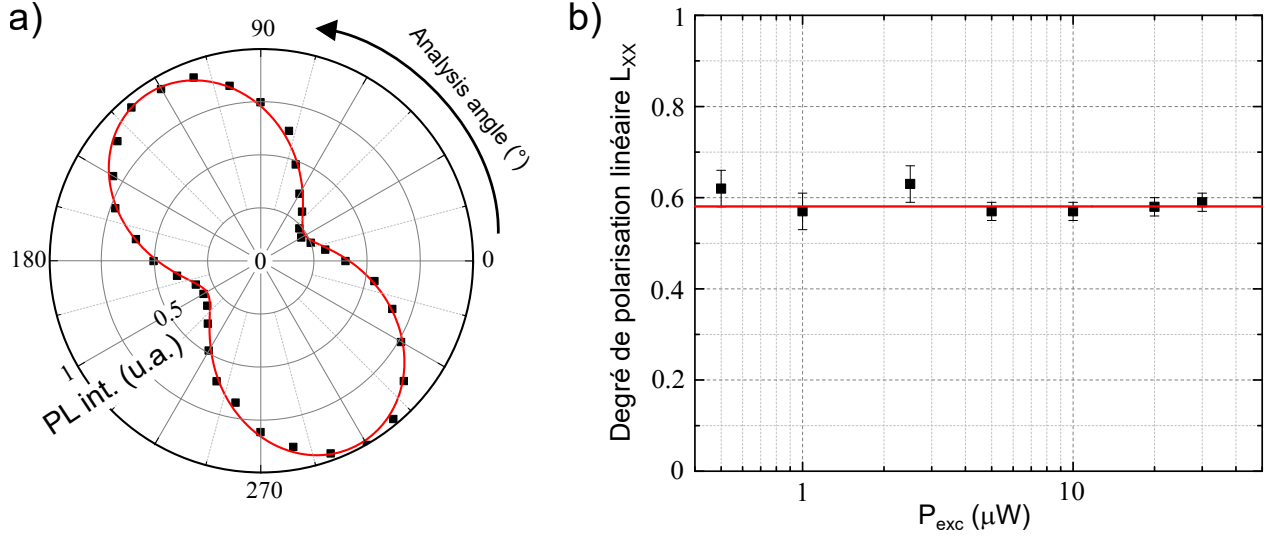


Fig. IV.10 – Degré de polarisation linéaire de l’émission du bi-exciton. Mesure effectuée sous excitation continue à $T = 5$ K. a) Graphique en coordonnées polaires de l’intensité (normalisée) de photoluminescence de la raie bi-excitonique intégrée sur la monocellule de l’APD en fonction de l’angle (2α), où α est l’angle de la lame $\lambda/2$, à la puissance $P_{\text{exc}} = 5 \mu\text{W}$. La courbe en rouge est un fit sinusoidal. b) L_{XX} en fonction de la puissance d’excitation P_{exc} . La courbe en rouge correspond à la valeur moyenne $L_{XX} = 0,58$.

Résultats expérimentaux. La figure IV.10 a) montre une mesure à la puissance $P_{\text{exc}} = 5 \mu\text{W}$. Les points expérimentaux sont reproduits avec une fonction sinusoidale $f_L(\alpha)$ telle que :

$$f_L(\alpha) = f_{\text{corr}}(\alpha) \cdot (A \sin(4(\alpha - \alpha_c)) + y_0), \quad (\text{IV.24})$$

avec α l’angle en radian de la lame demi-onde, y_0 l’intensité moyenne, A l’amplitude de la sinusoïde et α_c le décalage angulaire en radian. $f_{\text{corr}}(\alpha)$ est une fonction permettant de corriger l’asymétrie angulaire des données expérimentales. En effet, pour des positions angulaires de la lame équivalentes, l’intensité mesurée n’est pas parfaitement identique. Si l’on regarde la figure IV.10 a), on remarque que pour $2\alpha = 30^\circ$ et $2\alpha = 210^\circ$, l’intensité mesurée est différente alors qu’elle devrait être rigoureusement identique pour ces deux angles. Ceci provient vraisemblablement d’un défaut géométrique ou optique de la lame $\lambda/2$ utilisée. En effet, les deux faces de la lame peuvent ne pas être parfaitement parallèles, induisant un déplacement du spot légèrement en dehors du pixel de l’APD. Ce problème peut également provenir d’une inhomogénéité de l’indice optique de la lame. A titre indicatif $f_{\text{corr}}(\alpha) = 1 + B [\cos((\alpha - \alpha_0)) - 1]$. B est généralement petit, de l’ordre de quelques pourcents. Le degré de polarisation est alors donné par $L = A/y_0$. Cette mesure et cette analyse de la polarisation sont ensuite répétées pour plusieurs puissances d’excitation. La figure IV.10 b) présente le degré de polarisation L_{XX} en fonction de P_{exc} . Comme nous pouvons le voir, L_{XX} est constant, aux erreurs de mesures près, et a pour valeur $L_{XX} = 0,58$. Ceci est logique car le degré de polarisation linéaire du bi-exciton ne dépend que des taux Γ_x et Γ_y et ne dépend pas de la puissance d’excitation. Nous avons également effectué cette analyse en fonction de la température et comme attendu, L_{XX} est sensiblement le même. Ces résultats sont résumés sur le tableau IV.1.

T (K)	5	20	30	40	50
L_{XX}	0,58	0,54	0,60	0,54	0,59

Table IV.1 – L_{XX} pour différentes températures T .

Pour la suite de cette étude nous avons pris la valeur moyenne de ces mesures :

$$L_{XX} = 0,57 \pm 0,02 . \quad (\text{IV.25})$$

3.3 Conclusion intermédiaire

L'analyse de la raie bi-excitonique nous permet alors de déterminer les taux Γ_x et Γ_y en utilisant les relations IV.13 et IV.14 :

$$\boxed{\Gamma_x = 1,02 \pm 0,02 \text{ ns}^{-1}} , \quad (\text{IV.26})$$

$$\boxed{\Gamma_y = 0,28 \pm 0,02 \text{ ns}^{-1}} . \quad (\text{IV.27})$$

Ces résultats nous permettent de connaître l'anisotropie photonique de la structure étudiée. On obtient $\Gamma_x/\Gamma_y = 3,6$, en bon accord avec les simulations FDTD mentionnées dans la section 1.3 (le léger écart peut s'expliquer par une position hors axe de l'émetteur). Nous allons maintenant nous concentrer sur l'analyse des niveaux excitoniques, pour pouvoir mettre en évidence les processus de spin-flip à l'œuvre au sein de la boîte quantique.

4 Degré de polarisation linéaire de l'exciton

Dans cette section, nous examinons tout d'abord le lien théorique entre le degré de polarisation linéaire de l'émission excitonique et les taux de spin-flips. Nous présentons ensuite les résultats expérimentaux. Nous avons en particulier étudié l'influence de la puissance d'excitation, et celle de la température entre 5 K et 50 K.

4.1 Expression théorique de L_X

Nous avons vu que L_X dépend des populations en régime permanent \bar{n}_H et \bar{n}_V (equation IV.17). Sous excitation continue non résonante, toutes les transitions sont excitées par un même taux P . Dans ces conditions les populations des niveaux du modèle de la figure IV.6 sont déterminées par le système d'équations ci-dessous :

$$S \begin{pmatrix} \bar{n}_{XX} \\ \bar{n}_H \\ \bar{n}_V \\ \bar{n}_{D_1} \\ \bar{n}_{D_2} \\ \bar{n}_G \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} , \quad (\text{IV.28})$$

avec

$$S = \begin{pmatrix} -\Gamma_{XX} & P & P & P & P & 0 \\ \Gamma_H & -\Gamma'_H - P & \gamma_b & \gamma_\uparrow & \gamma_\uparrow & P \\ \Gamma_V & \gamma_b & -\Gamma'_V - P & \gamma_\uparrow & \gamma_\uparrow & P \\ 0 & \gamma_\downarrow & \gamma_\downarrow & -\gamma_d - 2\gamma_\uparrow - P & \gamma_d & P \\ 0 & \gamma_\downarrow & \gamma_\downarrow & \gamma_d & -\gamma_d - 2\gamma_\uparrow - P & P \\ 1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 1 \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.29})$$

et $\Gamma'_{H,V} = \Gamma_{H,V} + \gamma_b + 2\gamma_\downarrow$. La dernière ligne correspond à la loi de conservation de la population totale du système. Nous introduisons maintenant une nouvelle série de variables définies par :

$$\Sigma \bar{n}_B = \bar{n}_H + \bar{n}_V \quad (\text{IV.30})$$

$$\Delta \bar{n}_B = \bar{n}_H - \bar{n}_V \quad (\text{IV.31})$$

$$\Sigma \bar{n}_D = \bar{n}_{D_1} + \bar{n}_{D_2} \quad (\text{IV.32})$$

$$\Delta \bar{n}_D = \bar{n}_{D_1} - \bar{n}_{D_2}. \quad (\text{IV.33})$$

En sommant et soustrayant les lignes 2 et 3, ainsi que les lignes 4 et 5 dans l'équation IV.29, nous obtenons un nouveau système d'équations. De part la symétrie de ce système, nous obtenons immédiatement $\Delta \bar{n}_D = 0$. Le système d'équations restantes peut alors s'écrire :

$$\begin{pmatrix} -1 & 0 & p & p & 0 \\ \Delta\beta & -\frac{1}{2} - 2\tilde{\gamma}_{b\downarrow} - p & -\frac{1}{2}\Delta\beta & 0 & 0 \\ 1 & -\frac{1}{2}\Delta\beta & -\frac{1}{2} - 2\tilde{\gamma}_\downarrow - p & 2\tilde{\gamma}_\uparrow & 2p \\ 0 & 0 & 2\tilde{\gamma}_\downarrow & -2\tilde{\gamma}_\uparrow - p & 2p \\ 1 & 0 & 1 & 1 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \bar{n}_{XX} \\ \Delta \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_D \\ \bar{n}_G \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.34})$$

Tous les taux sont ici normalisés par Γ_{XX} . A l'exception du taux de pompage normalisé $p = P/\Gamma_{XX}$, tous les taux normalisés sont notés avec le symbole tilde (par exemple $\tilde{\gamma}_\uparrow = \gamma_\uparrow/\Gamma_{XX}$). Nous avons également introduit $\Delta\beta = \beta_H - \beta_V$, avec $\beta_{H,V} = \Gamma_{H,V}/(\Gamma_H + \Gamma_V)$, et $\tilde{\gamma}_{b\downarrow} = \tilde{\gamma}_b + \tilde{\gamma}_\downarrow$. Après substitution de n_G et n_{XX} , nous obtenons le système d'équations :

$$\begin{pmatrix} -\frac{1}{2} - 2\tilde{\gamma}_{b\downarrow} - p & \Delta\beta(-\frac{1}{2} + p) & \Delta\beta p \\ -\frac{1}{2}\Delta\beta & -\frac{1}{2} - 2\tilde{\gamma}_\downarrow - 2p - 2p^2 & 2\tilde{\gamma}_\uparrow - p - 2p^2 \\ 0 & 2\tilde{\gamma}_\downarrow - 2p - 2p^2 & -2\tilde{\gamma}_\uparrow - 3p - 2p^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ -2p \\ -2p \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.35})$$

En soustrayant la ligne 3 à la 2 et en prenant l'opposé du système, nous obtenons finalement :

$$\begin{pmatrix} \frac{1}{2} + 2\tilde{\gamma}_{b\downarrow} + p & \Delta\beta(\frac{1}{2} - p) & -\Delta\beta p \\ \frac{1}{2}\Delta\beta & \frac{1}{2} + 4\tilde{\gamma}_\downarrow & -4\tilde{\gamma}_\uparrow - 2p \\ 0 & -\tilde{\gamma}_\downarrow + p + p^2 & \tilde{\gamma}_\uparrow + \frac{3}{2}p + p^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Delta \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_B \\ \Sigma \bar{n}_D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ p \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.36})$$

Pour déterminer L_X , il nous suffit de calculer le rapport des populations :

$$\frac{\bar{n}_H}{\bar{n}_V} = \frac{\Sigma \bar{n}_B + \Delta \bar{n}_B}{\Sigma \bar{n}_B - \Delta \bar{n}_B}. \quad (\text{IV.37})$$

Ce rapport ne dépend que de $\Delta \bar{n}_B/\Sigma \bar{n}_B$ qui est déterminé par le système d'équations IV.36 tel que :

$$\frac{\Delta \bar{n}_B}{\Sigma \bar{n}_B} = \Delta\beta \frac{-(2\tilde{\gamma}_\uparrow + p) + 2p(\frac{1}{4} + 2\tilde{\gamma}_\uparrow + p)}{(2\tilde{\gamma}_\uparrow + p)(1 + 4\tilde{\gamma}_{b\downarrow} + 2p) - \frac{1}{2}\Delta\beta^2 p}. \quad (\text{IV.38})$$

Cette expression permet alors de déterminer L_X pour n'importe quels taux d'excitation P . Pour illustrer l'impact du spin-flip sur L_X nous allons détailler deux cas limites : la limite faible puissance d'excitation ($p \ll 1$) et la limite haute puissance d'excitation ($p \gg 1$).

Limite basse puissance. On suppose ici que $p \ll 1$ ($P \ll \Gamma_{XX}$), et que $P \ll \gamma_{\uparrow,\downarrow}$ et γ_b . La limite $p = 0$ dans l'équation IV.38 mène à :

$$\frac{\Delta \bar{n}_B}{\Sigma \bar{n}_B} = -\frac{\Delta \beta}{1 + 4\tilde{\gamma}_{b\downarrow}}, \quad (\text{IV.39})$$

d'où :

$$\frac{\bar{n}_H}{\bar{n}_V} = \frac{\Gamma_V + 2\gamma_{b\downarrow}}{\Gamma_H + 2\gamma_{b\downarrow}}. \quad (\text{IV.40})$$

En insérant cette expression dans l'équation IV.17, on peut alors montrer que le degré de polarisation de l'exciton neutre dans la limite de basse puissance s'écrit :

$$L_X = \frac{\gamma_{b\downarrow}(\Gamma_x - \Gamma_y) + \frac{1}{4} \sin^2(2\theta)(\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2)}{\Gamma_x \Gamma_y + \gamma_{b\downarrow}(\Gamma_x + \Gamma_y) + \frac{1}{4} \sin^2(2\theta)(\Gamma_x - \Gamma_y)^2}. \quad (\text{IV.41})$$

On remarque que L_X dépend directement des processus de spin-flip via le terme $\gamma_{b\downarrow} = \gamma_b + \gamma_{\downarrow}$. On examine dans un premier temps le cas où les axes photoniques sont alignés avec les dipôles de la boîte quantique ($\theta = 0$). La transition radiative $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ nourrit uniquement le mode M_x avec un taux Γ_x , alors que la transition $|V\rangle \rightarrow |g\rangle$ nourrit le mode M_y avec un taux Γ_y . En l'absence de spin-flip ($\gamma_{b\downarrow} = 0$), nous obtenons $L_X = 0$. Comme nous l'avons vu à la section 1.2, les états $|H\rangle$ et $|V\rangle$ se recombinent indépendamment et ont le temps d'émettre un photon avant une nouvelle excitation ($P \ll \Gamma_{H,V}$). Ceci assure alors un équilibre parfait entre les intensités collectées via les canaux x et y . Un taux de spin-flip non nul $\gamma_{b\downarrow}$ va mélanger les populations \bar{n}_H et \bar{n}_V , créant une compétition entre les deux canaux de recombinaison radiative et, par conséquent, va mener à l'apparition d'un degré de polarisation non nul. L_X atteint un maximum lorsque les processus de spin-flip sont plus rapides que les processus de recombinaison radiative ($\gamma_{b\downarrow} \gg \Gamma_{H,V}$), menant à $L_X = (\Gamma_x - \Gamma_y)/(\Gamma_x + \Gamma_y) \equiv L_X^\infty$. Le degré de polarisation est donc très sensible à la présence des processus de spin-flip. L_X varie de 0 à L_X^∞ quand $\gamma_{b\downarrow}$ varie de 0 à ∞ . De plus, on peut remarquer que L_X^∞ correspond précisément au degré de polarisation de l'émission bi-excitonique. La mesure de L_{XX} offre donc une référence qui permet de situer la limite des spin-flips rapides.

Limite haute puissance. On suppose ici $p \gg 1$ ($P \gg \Gamma_{XX}$). L'équation IV.38 prend alors la forme :

$$\frac{\Delta \bar{n}_B}{\Sigma \bar{n}_B} = \tilde{f}(p) \Delta \beta, \quad (\text{IV.42})$$

avec

$$\tilde{f}(p) = \left(\frac{p}{2\tilde{\gamma}_{\uparrow} + p} \right) \left(\frac{2\tilde{\gamma}_{\uparrow} + 2\tilde{\gamma}_{\downarrow} + p}{2\tilde{\gamma}_b + 2\tilde{\gamma}_{\downarrow} + p} \right). \quad (\text{IV.43})$$

$\tilde{f}(p)$ dépend de la compétition entre le taux de pompage et les processus de spin-flip. Si p est très supérieur aux taux de spin-flip, alors $\tilde{f}(p) = 1$. On a un déséquilibre de population à

cause de la relaxation préférentielle de $|XX\rangle$ vers $|H\rangle$. A l'inverse, si les taux de spin-flip sont plus rapides que p , $\tilde{f}(p) = 0$. Le rapport des populations des états brillants s'écrit :

$$\frac{\bar{n}_H}{\bar{n}_V} = \frac{(\Gamma_x + \Gamma_y) + \cos(2\theta)f(P)(\Gamma_x - \Gamma_y)}{(\Gamma_x + \Gamma_y) - \cos(2\theta)f(P)(\Gamma_x - \Gamma_y)}. \quad (\text{IV.44})$$

Cette expression ne présente que des taux non normalisés. On obtient f en enlevant les tildes sur les taux de spin-flip de \tilde{f} . On obtient alors le degré de polarisation linéaire tel que :

$$L_X = \frac{(\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2) + \cos^2(2\theta)f(P)(\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2)}{(\Gamma_x + \Gamma_y)^2 + \cos^2(2\theta)f(P)(\Gamma_x - \Gamma_y)^2}. \quad (\text{IV.45})$$

Nous considérons encore le cas où l'anisotropie photonique est la plus forte ($\theta = 0$). En l'absence de spin-flip ($\gamma_b = \gamma_{\uparrow,\downarrow} = 0$), $f(P) = 1$ et $L_X = (\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2)/(\Gamma_x^2 + \Gamma_y^2)$. Cette expression provient du fait que le bi-exciton se recombine préférentiellement vers l'état $|H\rangle$ et que la transition $|H\rangle \rightarrow |g\rangle$ est la plus rapide. Dans la limite opposée où les processus de spin-flip sont rapides (γ_b ou $\gamma_{\uparrow,\downarrow} \gg P$), $f(P) = 0$ et $L_X = (\Gamma_x - \Gamma_y)/(\Gamma_x + \Gamma_y) = L_X^\infty$. Dans la limite haute puissance, L_X permet également de déterminer la présence ou l'absence de processus de spin-flip. Contrairement à la limite basse puissance, la présence de spin-flip réduit ici L_X . Cette quantité passe de $(\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2)/(\Gamma_x^2 + \Gamma_y^2)$ à $(\Gamma_x - \Gamma_y)/(\Gamma_x + \Gamma_y)$ entre l'absence de spin-flip et le régime des spin-flips rapides. Il est important de remarquer que ces deux expressions tendent vers 1 lorsque $\Gamma_x \gg \Gamma_y$. Pour pouvoir étudier les processus de spin-flip dans le régime haute puissance, il faut donc une structure photonique avec une anisotropie optique modérée (Γ_x/Γ_y typiquement entre 2 et 6). C'est le cas pour le nanofil considéré dans cette étude qui a une anisotropie photonique $\Gamma_x/\Gamma_y = 3, 6$.

Influence de θ . Considérons maintenant le cas où $\theta \neq 0$. Lorsque θ augmente, chaque dipôle de la boîte quantique se couple simultanément aux deux canaux de recombinaison M_x et M_y , menant à une valeur non nulle de L_X , et ce même en l'absence de spin-flip. Un angle θ non nul a donc un effet sur L_X similaire à la présence de processus de spin-flip. En particulier, pour $\theta = \pi/4$, la sensibilité de la mesure de polarisation aux processus de spin-flip disparaît complètement. Quelque soit la valeur des taux de spin-flip, $L_X = L_X^\infty$, dans la limite basse ou haute puissance. Pour étudier les processus de spin-flip, il est alors crucial que θ soit proche de zéro. De plus, même si θ est faible, il est important de connaître sa valeur pour une analyse quantitative des résultats. Dans la limite basse puissance, la valeur du degré de polarisation nous permet de connaître la valeur maximale de θ . En effet, en utilisant l'équation IV.41, pour $\gamma_{b,\downarrow} = 0$, nous obtenons directement :

$$\sin(2\theta_{\max}) = 2\sqrt{\frac{L_X(0)\Gamma_x\Gamma_y}{\Gamma_x^2 - \Gamma_y^2 - L_{X0}(\Gamma_x - \Gamma_y)^2}}, \quad (\text{IV.46})$$

avec $L_X(0)$ la valeur de L_X à la puissance nulle. L'analyse des mesures de temps de vie nous permettra de déterminer plus précisément θ .

4.2 Influence de la puissance d'excitation à $T = 5 \text{ K}$

Nous avons dorénavant tous les outils théoriques pour analyser la forme du degré de polarisation L_X de l'exciton neutre. La mesure de L_X en fonction de la puissance d'excitation

est présentée sur la figure IV.11. Sur le panneau (a), on peut y voir trois analyses de polarisation pour trois puissances d'excitation différentes ($P_{\text{exc}} = 50 \text{ nW}, 1 \mu\text{W}, 20 \mu\text{W}$). On remarque une augmentation nette du degré de polarisation avec la puissance P_{exc} . De ces mesures, on déduit la valeur de L_X pour chaque puissance d'excitation considérée en utilisant la même fonction sinusoidale que celle détaillée à la section 3.2. L'évolution de L_X avec la puissance P_{exc} est disponible sur la figure IV.11 b). On retrouve sur ce graphique les points expérimentaux du bi-exciton qui servent de référence pour la limite des spin-flips rapides. On rappelle que $L_{XX} = (\Gamma_x - \Gamma_y)/(\Gamma_x + \Gamma_y) = L_X^\infty = 0,58$. Contrairement au bi-exciton, L_X dépend fortement de P_{exc} . L'extrapolation des données expérimentales à puissance nulle nous donne $L_X(0) = 0,19$. Cette valeur, bien inférieure à L_X^∞ , nous indique que les processus de spin-flip sont lents ($\gamma_{b\downarrow} \ll \Gamma_{H,V}$) et que θ est petit. En effet, la valeur de $L_X(0)$ et l'équation IV.46 nous permet déjà de savoir que $\theta_{\text{max}} = 15^\circ$ (nous verrons que les mesures de temps de vie permettent de déterminer $\theta = 13,5^\circ$). Lorsqu'on augmente P_{exc} , L_X augmente également jusqu'à approcher asymptotiquement L_X^∞ . A haute puissance, ceci est la signature d'un processus de spin-flip rapide ($\gamma_{b\downarrow} \gg \Gamma_{H,V}$). A ce stade nous pouvons déjà conclure que le taux de spin-flip augmente très fortement avec la puissance d'excitation.

Nous avons essayé de reproduire la dépendance de L_X avec la puissance d'excitation à l'aide du modèle explicité précédemment. Dans un premier temps, nous avons supposé que $\gamma_{b\downarrow}$ ne dépend pas de P_{exc} , sa valeur correspondant à la limite de puissance nulle, noté $\gamma_{b\downarrow}(0)$. On peut déterminer sa valeur directement avec l'équation IV.41. En effet nous connaissons $\Gamma_x, \Gamma_y, \theta$ et $L_X(0)$. On obtient alors $\gamma_{b\downarrow}(0) = 0,02 \text{ ns}^{-1}$. Le seul paramètre du fit est alors le facteur de proportionnalité entre le taux de pompage P et la puissance d'excitation P_{exc} : il est donné par la dépendance en puissance de l'intensité intégrée de la raie excitonique (voir figure IV.4 b) et prend comme valeur $P/P_{\text{exc}} = (0,07 \pm 0,02) \text{ ns}^{-1} \cdot \mu\text{W}^{-1}$. Le fit reproduisant L_X est tracé en pointillé bleu sur la figure IV.11 b). Il permet de bien décrire la limite basse puissance mais échoue à décrire la partie haute puissance. Comme discuté précédemment, c'est la signature que les processus de spin-flip s'accélèrent lorsque la puissance d'excitation augmente. Pour tenir compte de ce comportement, nous avons donc ajouté, de manière empirique, une dépendance linéaire entre $\gamma_{b\downarrow}$ et P telle que :

$$\gamma_{b\downarrow} = \gamma_{b\downarrow}(0) + \left(\frac{d\gamma_{b\downarrow}}{dP} \right) P. \quad (\text{IV.47})$$

Avec $\frac{d\gamma_{b\downarrow}}{dP} \approx 4$ (nous avons fait peser l'augmentation de la manière identique sur γ_b et γ_\downarrow), ce modèle permet de reproduire fidèlement les points expérimentaux (courbe bleue en trait plein sur la figure IV.11). Cette analyse permet de souligner le lien fort entre $\gamma_{b\downarrow}$ et la puissance de pompe. Lorsque P_{exc} varie de $0,05 \mu\text{W}$ à $30 \mu\text{W}$, $\gamma_{b\downarrow}$ est multiplié par un facteur 360.

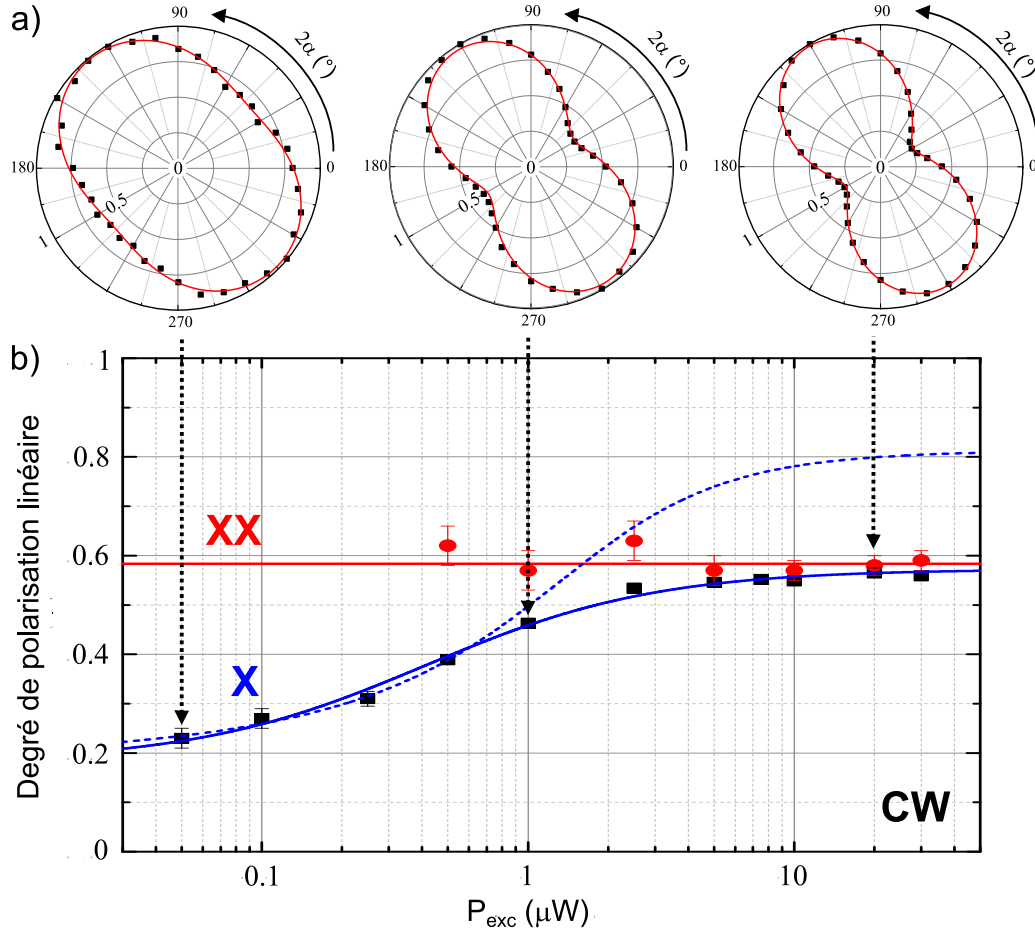


Fig. IV.11 – Effet de la puissance d'excitation sur le degré de polarisation linéaire. Mesures effectuées à $T = 5$ K en régime d'excitation continue (CW). a) Intensités normalisées de la raie excitonique intégrées via l'APD en fonction de l'angle 2α de la lame $\lambda/2$, pour trois puissances $P_{exc} = 50$ nW, $1\mu\text{W}$, $20\mu\text{W}$ (de gauche à droite). Graphiques tracés en coordonnées polaires. b) Degré de polarisation linéaire en fonction de la puissance d'excitation P_{exc} en échelle semi-log. Les carrés noirs correspondent à L_X . Nous avons tracé, pour rappel, L_{XX} (disques rouges). Comme nous l'avons vu L_{XX} est constant aux erreurs de mesures près (ligne rouge). Par contre L_X dépend fortement de P_{exc} . La courbe bleue en pointillées est un fit de L_X où $\gamma_{b\downarrow}$ est constant et égal à sa valeur à puissance nulle (c'est-à-dire $\gamma_{b\downarrow} = \gamma_{b\downarrow}(0)$). La courbe bleue en trait plein est le même fit mais en considérant que $\gamma_{b\downarrow}$ augmente linéairement avec P_{exc} (le texte détaille ce point).

4.3 Effet de la température

Nous avons réalisé les mêmes mesures en variant la température du cryostat de 5 K à 50 K. L'évolution du degré de polarisation linéaire L_X avec la puissance d'excitation pour différentes températures est montrée sur la figure IV.12 a).

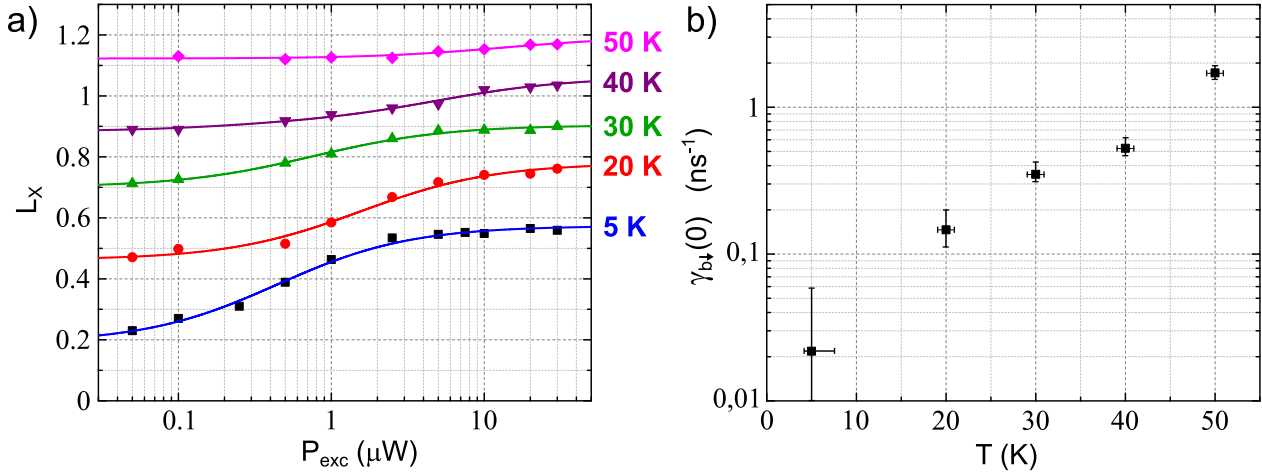


Fig. IV.12 – Effet de la température sur le degré de polarisation linéaire. a) L_X en fonction de P_{exc} pour différentes températures. Un décalage vertical de 0,15 est ajouté entre chaque courbe pour plus de clarté. Les courbes en trait plein correspondent aux fits pour chaque mesure (voir paragraphe précédent pour le détail du fit). b) L'extrapolation de L_X à la puissance nulle $P_{exc} = 0$ nous mène à la détermination de $\gamma_{b\downarrow}(0)$. Ce taux de spin-flip est tracé en fonction de la température en échelle semi-log. Les barres d'erreurs verticales correspondent à l'imprécision sur θ ($\theta_{\min} = 10^\circ$ et $\theta_{\max} = 15^\circ$). Les barres d'erreurs horizontales correspondent à l'imprécision sur la température réelle de l'échantillon (nous ne contrôlons que la température du doigt froid sur lequel repose l'échantillon).

On observe que, quelque soit la température, L_X augmente avec P_{exc} . Toutefois, dans le régime des basses puissances, $L_X(0)$ augmente avec T , aplatissant de plus en plus la courbe. Ceci est le signe que $\gamma_{b\downarrow}(0)$ augmente également avec T . En effet, l'extrapolation des fits de L_X à la puissance nulle nous permet de connaître la valeur de $\gamma_{b\downarrow}(0)$ à chaque température. Le tableau IV.2 résume cette analyse et la figure IV.12 b) montre l'évolution de ce paramètre avec la température en échelle semi-logarithmique. Il semble que $\gamma_{b\downarrow}(0)$ augmente quasi exponentiellement avec T avec une énergie thermique d'activation $k_B \times 10$ K.

T (K)	5	20	30	40	50
$L_X(0)$	0,19	0,31	0,40	0,44	0,52
$\gamma_{b\downarrow}$ (ns^{-1})	$0,02 \pm 0,04$	$0,15 \pm 0,05$	$0,35 \pm 0,06$	$0,52 \pm 0,09$	$1,7 \pm 0,1$

Table IV.2 – Détermination de $\gamma_{b\downarrow}(0)$ pour différentes températures T .

À ce stade, on peut se demander si la forte augmentation de $\gamma_{b\downarrow}$ avec P_{exc} observée à $T = 5\text{K}$ peut être expliquée par une augmentation locale de la température induite par le faisceau laser d'excitation. Pour le vérifier, nous avons mesuré le décalage vers le rouge de

la longueur d'émission des raies excitoniques lorsqu'on augmente P_{exc} (avec $T = 5$ K) et comparé ce décalage avec celui induit par une augmentation de la température du cryostat (pour une faible puissance d'excitation). Entre $P_{exc} = 50$ nW et $P_{exc} = 30$ μ W on observe un décalage de 40 pm. L'augmentation de la température du cryostat induit quant à elle un décalage de 77 pm/K. On en déduit alors que le laser cause seulement une augmentation locale de 0,5 K. On peut alors conclure que la hausse de $\gamma_{b\downarrow}$ avec la puissance d'excitation ne peut pas s'expliquer par une hausse de la température. Nous reviendrons plus en détails sur les mécanismes qui pourraient être à l'œuvre à la fin de ce chapitre.

4.4 Conclusion intermédiaire

Nous avons montré que l'analyse de la polarisation de l'émission de l'exciton est un outil simple mais très efficace pour sonder les processus de spin-flip en jeu dans une boîte quantique. Nous avons montré que, pour la boîte quantique particulière étudiée, les processus de spin-flip sont très lents dans la limite des basses puissances d'excitation. Par contre nous avons observé une forte accélération du spin-flip dans le régime des hautes puissances d'excitation qui ne peut pas s'expliquer avec une hausse locale de la température. L'accès à ce régime des hautes puissances est l'atout majeur de notre étude, car ce régime est très difficile à étudier avec des mesures de temps de vie des niveaux excitoniques. En effet, pour éviter les effets de réservoir associés aux niveaux de plus haute énergie, ces mesures sont habituellement réalisées dans le régime des basses puissances. Cependant, elles permettent de différencier les processus de spin-flip direct ("brillant-brillant") des processus de spin-flip indirect ("noir-brillant" ou "brillant-noir"), au moins dans la limite basse puissance. Elles apportent donc une complémentarité à l'analyse de la polarisation pour étudier les processus de spin-flip. Nous allons détailler ces mesures de temps de vie dans la section suivante.

5 Temps de vie des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$

5.1 Modèle analytique

Nous supposons ici une excitation instantanée et équi-probable, c'est-à-dire qu'à $t = 0$, les quatre états de l'exciton neutre ont des populations identiques : $n_H(0) = n_V(0) = n_{D_1}(0) = n_{D_2}(0)$. La puissance d'excitation est fixée à une valeur suffisamment basse pour pouvoir négliger la population du bi-exciton ($n_{XX} = 0$). Les populations excitoniques évoluent dans le temps selon le système à trois équations suivant :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} n_H \\ n_V \\ \Sigma n_D \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} n_H \\ n_V \\ \Sigma n_D \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.48})$$

avec

$$M = \begin{pmatrix} -\Gamma'_H & \gamma_b & \gamma_{\uparrow} \\ \gamma_b & -\Gamma'_V & \gamma_{\uparrow} \\ 2\gamma_{\downarrow} & 2\gamma_{\downarrow} & -2\gamma_{\uparrow} \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.49})$$

De la même manière que dans le cas de l'excitation continue, nous avons introduit les variables $\Sigma n_D = n_{D_1} + n_{D_2}$ et $\Delta n_D = n_{D_1} - n_{D_2}$. L'équation régissant la différence des populations des

excitons noirs, $\frac{d}{dt}\Delta n_D = -2(\gamma_d + \gamma_\uparrow)\Delta n_D$, est découplée des autres équations et mène directement à $\Delta n_D = 0$ pour les conditions initiales considérées. Nous accédons à la dynamique des populations en mesurant le signal optique associé à la recombinaison radiative des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$. Nous discutons dans la suite du sous-espace isolé $\{n_H, n_V, \Sigma n_D\}$. L'évolution temporelle de ces populations est obtenu en diagonalisant la matrice M . Nous obtenons alors :

$$\begin{pmatrix} n_H \\ n_V \\ \Sigma n_D \end{pmatrix} = \alpha_1 \mathbf{V}_1 e^{-\Gamma_1 t} + \alpha_2 \mathbf{V}_2 e^{-\Gamma_2 t} + \alpha_3 \mathbf{V}_3 e^{-\Gamma_3 t}, \quad (\text{IV.50})$$

où les taux Γ_i ($i = 1, 2, 3$) sont les opposés des valeurs propres de M , \mathbf{V}_i les vecteurs propres qui leur sont associés et α_i les constantes scalaires qui sont fixées par les conditions initiales. Dans la suite de cette section nous allons analyser des mesures de temps de vie résolue selon les directions linéaires de polarisation x et y . Les intensités $I_x(t)$ et $I_y(t)$ sont données par l'équation IV.19. Les données expérimentales seront analysées numériquement mais il est néanmoins intéressant, pour comprendre la physique sous-jacente, d'examiner quelques cas limites. En utilisant la théorie des perturbations au premier ordre, nous allons donner les expressions analytiques des populations dans trois régimes : (i) Spin-flip lent ($\gamma_b, \gamma_{\uparrow,\downarrow} \ll \Gamma_{H,V}$), (ii) Spin-flip "brillant-brillant" rapide et spin-flip "noir-brillant" lent ($\gamma_b \gg \Gamma_{H,V} \gg \gamma_{\uparrow,\downarrow}$) et enfin (iii) Spin-flip rapide ($\gamma_b, \gamma_{\uparrow,\downarrow} \gg \Gamma_{H,V}$).

Limite des spin-flips lents. Dans ces conditions ($\gamma_b, \gamma_{\uparrow,\downarrow} \ll \Gamma_{H,V}$) nous pouvons réécrire le système d'équations IV.48 tel que :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} n_H \\ n_V \\ \Sigma n_D \end{pmatrix} = [R + S] \begin{pmatrix} n_H \\ n_V \\ \Sigma n_D \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.51})$$

R correspond à la contribution radiative dominante et s'écrit :

$$R = \begin{pmatrix} -\Gamma_H & 0 & 0 \\ 0 & -\Gamma_V & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.52})$$

et la partie perturbative associée aux processus de spin-flip se retrouve sous la forme :

$$S = \begin{pmatrix} -\gamma_b - 2\gamma_\downarrow & \gamma_b & \gamma_\uparrow \\ \gamma_b & -\gamma_b - 2\gamma_\downarrow & \gamma_\uparrow \\ 2\gamma_\downarrow & 2\gamma_\downarrow & -2\gamma_\uparrow \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.53})$$

R est diagonale et non dégénérée. La résolution de ce système au premier ordre nous mène directement à :

$$\Gamma_1 = \Gamma_H + (\gamma_b + 2\gamma_\downarrow) \quad (\text{IV.54})$$

$$\Gamma_2 = \Gamma_V + (\gamma_b + 2\gamma_\downarrow) \quad (\text{IV.55})$$

$$\Gamma_3 = 2\gamma_\uparrow. \quad (\text{IV.56})$$

Nous avons la hiérarchie $\Gamma_1 \geq \Gamma_2 \gg \Gamma_3$. On applique la théorie perturbative au premier ordre pour déterminer les vecteurs propres de la matrice $R + S$. En tenant compte des conditions initiales, les populations évoluent dans le temps selon :

$$n_H(t) = +\left(1 - \frac{\gamma_b}{\Delta\Gamma} - \frac{2\gamma_\uparrow}{\Gamma_H}\right)e^{-\Gamma_1 t} + \left(\frac{\gamma_b}{\Delta\Gamma}\right)e^{-\Gamma_2 t} + \left(\frac{2\gamma_\uparrow}{\Gamma_H}\right)e^{-\Gamma_3 t}, \quad (\text{IV.57})$$

$$n_V(t) = -\left(\frac{\gamma_b}{\Delta\Gamma}\right)e^{-\Gamma_1 t} + \left(1 + \frac{\gamma_b}{\Delta\Gamma} - \frac{2\gamma_\uparrow}{\Gamma_V}\right)e^{-\Gamma_2 t} + \left(\frac{2\gamma_\uparrow}{\Gamma_V}\right)e^{-\Gamma_3 t}, \quad (\text{IV.58})$$

$$\Sigma n_D(t) = -\left(\frac{2\gamma_\downarrow}{\Gamma_H}\right)e^{-\Gamma_1 t} - \left(\frac{2\gamma_\downarrow}{\Gamma_V}\right)e^{-\Gamma_2 t} + \left(2 + \frac{2\gamma_\downarrow}{\Gamma_H} + \frac{2\gamma_\downarrow}{\Gamma_V}\right)e^{-\Gamma_3 t}, \quad (\text{IV.59})$$

avec $\Delta\Gamma = \Gamma_H - \Gamma_V$. $n_H(t)$ est dominé par le premier terme associé au taux $\Gamma_1 \approx \Gamma_H$. Le spin-flip direct “brillant-brillant” a pour effet de mélanger légèrement les populations des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$. Ce mélange correspond au deuxième terme associé au taux $\Gamma_2 \approx \Gamma_V$. Le spin-flip indirect “noir-brillant” induit également un faible mélange entre les populations des états $|H\rangle$ et des états noirs, caractérisé par le troisième terme associé au taux $\Gamma_3 \approx 2\gamma_\uparrow$. Expérimentalement, ce terme perturbatif se manifestera par une “queue” exponentielle plus lente aux temps longs. Les mêmes considérations peuvent être appliquées à $n_V(t)$ en échangeant les rôles des termes associés à Γ_1 et Γ_2 .

Limite des spin-flips directs rapides et des spin-flips indirects lents. On considère maintenant la situation intermédiaire ($\gamma_b \gg \Gamma_{H,V} \gg \gamma_{\uparrow,\downarrow}$). Pour exploiter la symétrie des processus de spin-flip direct, nous introduisons les nouvelles variables $\Delta n_B = n_H - n_V$ et $\Sigma n_B = n_H + n_V$. L'équation IV.48 se réécrit tel que :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \Delta n_B \\ \Sigma n_B \\ \Sigma n_D \end{pmatrix} = [S'_b + R' + S'_\downarrow] \begin{pmatrix} \Delta n_B \\ \Sigma n_B \\ \Sigma n_D \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.60})$$

Le processus de spin-flip direct qui domine ce système est simplement décrit par :

$$S'_b = \begin{pmatrix} -2\gamma_b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.61})$$

Les deux matrices perturbatives R' et S'_\downarrow sont traitées séparément. Le terme dominant R' est donné par :

$$R' = - \begin{pmatrix} \overline{\Sigma\Gamma} & \overline{\Delta\Gamma} & 0 \\ \overline{\Delta\Gamma} & \overline{\Sigma\Gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.62})$$

avec $\overline{\Sigma\Gamma} = \frac{1}{2}\Sigma\Gamma = \frac{1}{2}(\Gamma_H + \Gamma_V)$ et $\overline{\Delta\Gamma} = \frac{1}{2}\Delta\Gamma = \frac{1}{2}(\Gamma_H - \Gamma_V)$. Du fait que S'_b est dégénéré dans le sous-espace $\{\Sigma n_B, \Sigma n_D\}$, nous diagonalisons d'abord la somme $S'_b + R'$. En se restreignant au premier ordre, nous obtenons :

$$P^{-1}(S'_b + R')P = - \begin{pmatrix} 2\gamma_b + \overline{\Sigma\Gamma} & 0 & 0 \\ 0 & \overline{\Sigma\Gamma} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \text{avec} \quad P = \begin{pmatrix} 1 & -\delta & 0 \\ \delta & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (\text{IV.63})$$

et $\delta = \Delta\Gamma/(4\gamma_b)$. On exprime maintenant S'_\downarrow dans la nouvelle base tel que :

$$P^{-1}S'_\downarrow P = \begin{pmatrix} -2\gamma_\downarrow & 0 & 2\gamma_\uparrow\delta \\ 0 & -2\gamma_\downarrow & 2\gamma_\uparrow \\ 2\gamma_\downarrow\delta & 2\gamma_\downarrow & -2\gamma_\uparrow \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.64})$$

Finalement, la théorie perturbative au premier ordre nous permet de trouver les trois taux :

$$\Gamma_1 = 2\gamma_b + \frac{\Sigma\Gamma}{2} + 2\gamma_\downarrow \quad (\text{IV.65})$$

$$\Gamma_2 = \frac{\Sigma\Gamma}{2} + 2\gamma_\downarrow \quad (\text{IV.66})$$

$$\Gamma_3 = 2\gamma_\uparrow. \quad (\text{IV.67})$$

Suivant nos hypothèses de départ, nous avons la hiérarchie $\Gamma_1 \gg \Gamma_2 \gg \Gamma_3$. La détermination des vecteurs propres de $(S'_b + R') + S'_\downarrow$, toujours au premier ordre, nous mène à :

$$n_H = +\left(\frac{\Delta\Gamma}{4\gamma_b}\right)e^{-\Gamma_1 t} + \left(1 - \frac{4\gamma_\uparrow}{\Sigma\Gamma} - \frac{\Delta\Gamma}{4\gamma_b}\right)e^{-\Gamma_2 t} + \left(\frac{4\gamma_\uparrow}{\Sigma\Gamma}\right)e^{-\Gamma_3 t} \quad (\text{IV.68})$$

$$n_V = -\left(\frac{\Delta\Gamma}{4\gamma_b}\right)e^{-\Gamma_1 t} + \left(1 - \frac{4\gamma_\uparrow}{\Sigma\Gamma} + \frac{\Delta\Gamma}{4\gamma_b}\right)e^{-\Gamma_2 t} + \left(\frac{4\gamma_\uparrow}{\Sigma\Gamma}\right)e^{-\Gamma_3 t} \quad (\text{IV.69})$$

$$\Sigma n_D = -2\left(\frac{4\gamma_\downarrow}{\Sigma\Gamma}\right)e^{-\Gamma_2 t} + 2\left(1 + \frac{4\gamma_\downarrow}{\Sigma\Gamma}\right)e^{-\Gamma_3 t}. \quad (\text{IV.70})$$

A l'ordre zéro, les évolutions temporelles de $n_H(t)$ et $n_V(t)$ sont identiques et dominées par le terme associé au taux $\Gamma_2 \approx \Sigma\Gamma/2$. Le spin-flip rapide entre états brillants entraîne un moyennage entre les deux canaux radiatifs. Le terme associé à ce mélange rapide des populations des états $|H\rangle$ et $|V\rangle$, avec un taux $\Gamma_1 \approx 2\gamma_b$, apparaît comme une perturbation car les populations initiales sont identiques. Finalement, le terme associé au taux $\Gamma_3 \approx 2\gamma_\uparrow$ correspond à une perturbation au premier ordre. Il a pour effet de rajouter une "queue" lente aux temps longs associée à la conversion des excitons noirs vers les brillants.

Limite des spin-flips rapides. On considère finalement le cas où tous les processus de spin-flip sont rapides ($\gamma_b, \gamma_{\uparrow,\downarrow} \gg \Gamma_{H,V}$). Pour pouvoir diagonaliser la contribution totale des spin-flips, nous introduisons les nouvelles variables $\Delta_\downarrow = (\gamma_\downarrow/\gamma_\uparrow)\Sigma n_B - (\gamma_\uparrow/\gamma_\downarrow)\Sigma n_D$, avec $\gamma_\uparrow = \gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow$ et $\Sigma = \Sigma n_B + \Sigma n_D$. L'équation IV.48 se réécrit :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \Delta n_B \\ \Delta_\downarrow \\ \Sigma \end{pmatrix} = [S'' + R''] \begin{pmatrix} \Delta n_B \\ \Delta_\downarrow \\ \Sigma \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.71})$$

S'' correspond à la contribution dominante des processus de spin-flip. Cette matrice est de la forme :

$$S'' = \begin{pmatrix} -2\gamma_{b\downarrow} & 0 & 0 \\ 0 & -2\gamma_\uparrow & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{IV.72})$$

avec $\gamma_{b\downarrow} = \gamma_b + \gamma_\downarrow$. La partie perturbative associée aux processus radiatifs s'écrit :

$$R'' = - \begin{pmatrix} \overline{\Sigma\Gamma} & \overline{\Delta\Gamma} & \frac{\gamma_\uparrow}{\gamma_\downarrow} \overline{\Delta\Gamma} \\ \frac{\gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow} \overline{\Delta\Gamma} & \frac{\gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow} \overline{\Sigma\Gamma} & \frac{\gamma_\uparrow \gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow^2} \overline{\Sigma\Gamma} \\ \overline{\Delta\Gamma} & \overline{\Sigma\Gamma} & \frac{\gamma_\uparrow}{\gamma_\downarrow} \overline{\Sigma\Gamma} \end{pmatrix}. \quad (\text{IV.73})$$

On exclut la dégénérescence accidentelle où $\gamma_{b\downarrow} = \gamma_\uparrow$ (ou de manière équivalente $\gamma_b = \gamma_\uparrow$). Au premier ordre, la théorie des perturbations nous donne les valeurs propres :

$$\Gamma_1 = 2(\gamma_b + \gamma_\downarrow) + \frac{\Sigma\Gamma}{2} \quad (\text{IV.74})$$

$$\Gamma_2 = 2(\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow) + \frac{\gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow} \frac{\Sigma\Gamma}{2} \quad (\text{IV.75})$$

$$\Gamma_3 = \frac{\gamma_\uparrow}{\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow} \frac{\Sigma\Gamma}{2}, \quad (\text{IV.76})$$

avec la hiérarchie $\Gamma_1, \Gamma_2 \gg \Gamma_3$. Comme dans les cas précédents, les vecteurs propres de $(S'' + R'')$ sont obtenus dans le cadre de la théorie des perturbations au premier ordre. Les expressions analytiques complètes sont très lourdes et nous ne donnerons que les termes d'ordre zéro. Dans la suite, nous utiliserons la notation $O^i\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right)$ pour désigner les corrections du premier ordre (Γ est un taux radiatif et γ un taux de spin-flip tel que $\Gamma/\gamma \ll 1$). Prenant en compte les conditions initiales, les populations s'écrivent finalement :

$$\begin{aligned} n_H &= \left[O_H^1\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_1 t} + \left[\frac{\gamma_\downarrow - \gamma_\uparrow}{\gamma_\uparrow} + O_H^2\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_2 t} + \left[2\frac{\gamma_\uparrow}{\gamma_\downarrow} + O_H^3\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_3 t} \\ n_V &= \left[O_V^1\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_1 t} + \left[\frac{\gamma_\downarrow - \gamma_\uparrow}{\gamma_\downarrow} + O_V^2\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_2 t} + \left[2\frac{\gamma_\uparrow}{\gamma_\downarrow} + O_V^3\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_3 t} \\ \Sigma n_D &= \left[2\frac{\gamma_\uparrow - \gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow} + O_D^2\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_2 t} + \left[4\frac{\gamma_\downarrow}{\gamma_\uparrow} + O_D^3\left(\frac{\Gamma}{\gamma}\right) \right] e^{-\Gamma_3 t}. \end{aligned}$$

avec $\gamma_\uparrow = \gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow$. A l'ordre zéro, $n_H(t)$ et $n_V(t)$ présentent une dépendance temporelle identique. Le terme associé à la recombinaison rapide avec un taux $\Gamma_2 \approx 2(\gamma_\uparrow + \gamma_\downarrow)$ correspond au moyennage entre les populations des excitons brillants et ceux des excitons noirs. Ce terme est présent à l'ordre zéro car, en général, les conditions initiales ne correspondent pas aux valeurs d'équilibre définies par les taux γ_\uparrow et γ_\downarrow . Le dernier terme associé au taux $\Gamma_3 = (\gamma_\uparrow/\gamma_\downarrow)(\Sigma\Gamma/2)$, est dominé par les recombinaisons radiatives lentes. Le spin-flip rapide entre les états brillants mène à moyennage le taux de recombinaison radiative de ces deux états. Le spin-flip rapide entre excitons noirs et excitons brillants mène à une réduction supplémentaire par un facteur $\gamma_\uparrow/\gamma_\downarrow$, la fraction temporelle pendant lequel l'exciton est dans un état brillant. A haute température, $\gamma_\uparrow \approx \gamma_\downarrow$ et $\Gamma_3 \approx \Sigma\Gamma/4$.

Nous avons dorénavant toutes les bases théoriques pour analyser les mesures de temps qui seront présentées dans la section suivante.

5.2 Résultats expérimentaux

De la même manière que lors de la mesure du temps de vie de l'état bi-excitonique, le laser d'excitation Ti :Saphir est réglé en mode pulsé (des impulsions de l'ordre de 0, 2 ps sont émises

à la fréquence de 76 MHz). La puissance d'excitation est également prise suffisamment basse pour assurer une population de l'état excitonique autour de 10 % de sa valeur à saturation. Ceci permet d'éviter les effets de réservoir des états de plus haute énergie. L'état $|XX\rangle$ peut donc être ici négligé. De plus, ces mesures sont résolues en polarisation. La direction d'analyse peut être alignée selon les directions photoniques x et y . La figure IV.13 montre les mesures de temps de vie de l'état excitonique selon les directions de polarisation x et y . Ces mesures ont ensuite été répétées en modifiant la température du cryostat entre 5 K et 50 K.

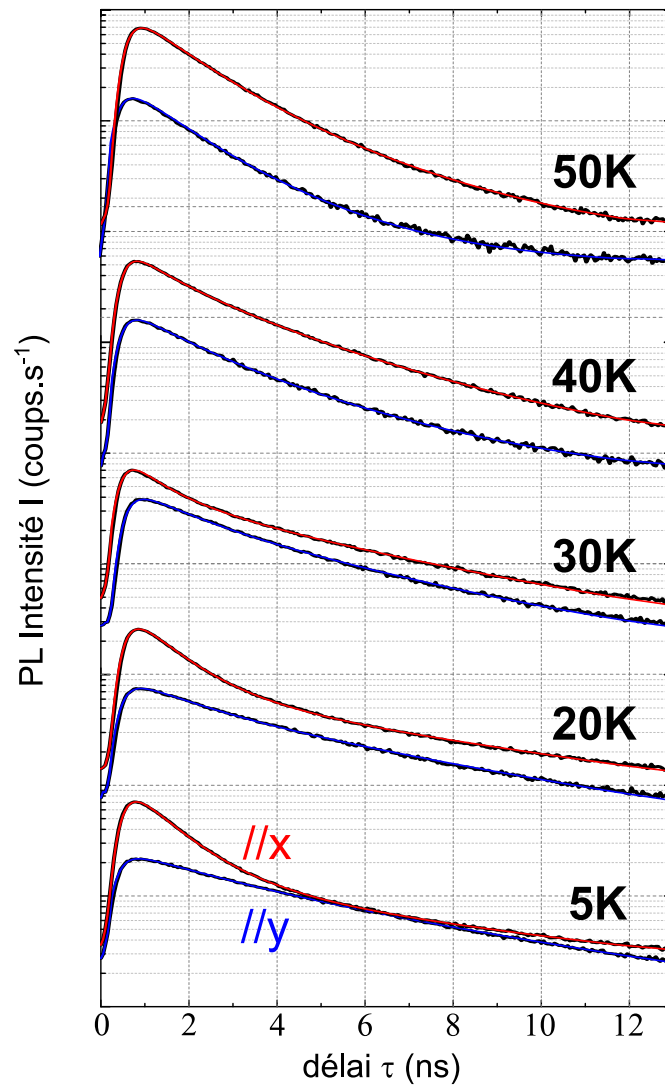


Fig. IV.13 – Mesures de temps de vie de l'état excitonique résolues en temps et en polarisation. L'intensité de photoluminescence en fonction du temps est tracée en échelle semi-logarithmique. Ces mesures sont réalisées pour plusieurs températures entre 5 K et 50 K. Pour chaque température, nous présentons les données résolues en polarisation selon les axes x (en rouge) et y (en bleu). Les données expérimentales (en noir) sont reproduites par une fonction à trois exponentielles décroissantes convoluée à la réponse de l'instrument de mesure (courbes rouges et bleues en trait plein).

Analyse qualitative. Nous nous concentrons d’abord sur les données à $T = 5$ K. Les deux courbes présentent un déclin temporel multi-exponentiel. De plus, le premier déclin rapide est visiblement très différent entre les canaux x et y . En ce référant à la discussion des cas limites de la section précédente, cette première observation nous permet de conclure que nous sommes proches d’un régime où les processus de spin-flip sont lents par rapport aux processus radiatifs ($\gamma_b, \gamma_{\uparrow, \downarrow} \ll \Gamma_{H, V}$). Pour un angle θ assez faible (c’est le cas ici, pour rappel, les mesures de polarisation prévoient que $\theta \leq 15^\circ$), le déclin rapide du canal x est dominé par Γ_H , alors que le déclin rapide du canal y est dominé par Γ_V . La “queue” lente aux temps longs peut être directement interprétée par la conversion des états noirs vers les états brillants, avec un taux dominé par $2\gamma_{\uparrow}$. On remarque aussi qu’il n’y a pas une différence importante entre les intensités intégrées temporellement entre les canaux x et y . Ces observations sont cohérentes avec la mesure d’un degré de polarisation linéaire relativement faible dans le régime des basses puissances (à $T = 5$ K, la puissance utilisée est $P_{exc} = 60$ nW).

L’augmentation de la température change profondément la dynamique temporelle des intensités $I_x(t)$ et $I_y(t)$. A mesure que la température de l’échantillon augmente, nous effectuons les observations suivantes : (i) Les courbes de déclin restent multi-exponentielles. (ii) Les taux de déclin aux temps courts des canaux x et y deviennent identiques. (iii) Le taux de déclin aux temps longs augmente avec la température. (iv) Les intensités intégrées temporellement associées aux canaux x et y sont de plus en plus différentes : la lumière est émise préférentiellement via le canal de recombinaison x . Ces quatre observations s’interprètent par une accélération des processus de spin-flip. Ce résultat n’est pas une surprise et confirme l’analyse menée sur le degré de polarisation linéaire en régime permanent. Cependant, ces mesures de temps de vie vont nous permettre de séparer les contributions des différents processus de spin-flip. Nous allons montrer en particulier que les processus de spin-flip direct avec le taux γ_b s’accélèrent avec T jusqu’à devenir le processus de conversion prioritaire, et que les spin-flip indirects entre états noirs et brillants vont également s’accélérer mais dans une moindre mesure et vont rester plus lents que les processus radiatifs. Cette situation correspond à la situation intermédiaire développée aux cours de la section précédente. Nous allons maintenant procéder à une analyse quantitative des données expérimentales.

Analyse quantitative. Pour analyser les données expérimentales, nous suivons la procédure suivante. Les données sont d’abord reproduites par un fit d’une fonction de déclin à trois exponentielles convoluée à la réponse $Rep(t)$ de l’instrument (voir section 3.1 pour plus détails). Ce premier fit nous donne accès aux trois taux Γ_1, Γ_2 et Γ_3 (avec la convention $\Gamma_1 > \Gamma_2 > \Gamma_3$). Les autres paramètres libres du fit sont les trois poids de chaque exponentielle notés A_1, A_2 et A_3 , et également une constante B correspondant au bruit d’obscurité. A $T = 5$ K, cette première étape nous permet déterminer θ, Γ_H et Γ_V . En effet, à cette température nous sommes dans le régime des spin-flip lents. La différence $\Gamma_1 - \Gamma_2$ est alors égale au premier ordre à $\Gamma_H - \Gamma_V$. L’équation IV.20 nous donne $\theta = 13,5^\circ$. Nous connaissons Γ_x et Γ_y grâce aux mesures effectuées sur le bi-exciton, l’équation IV.4 nous mène directement aux taux Γ_H et Γ_V :

$$\Gamma_H = 0,98 \pm 0,04 \text{ ns}^{-1} \quad (\text{IV.77})$$

$$\Gamma_V = 0,32 \pm 0,04 \text{ ns}^{-1}. \quad (\text{IV.78})$$

La seconde étape de l'analyse est la détermination des taux de spin-flip. En diagonalisant la matrice 3×3 qui apparaît dans l'équation IV.48 et en utilisant une routine Matlab[®], nous déterminons le jeu de taux de spin-flip $\{\gamma_b, \gamma_\downarrow, \gamma_\uparrow\}$ qui permet d'approcher au mieux le jeu de taux expérimentaux $\{\Gamma_1, \Gamma_2, \Gamma_3\}$. Du fait de l'invariance de la trace de cette matrice, cette inversion repose sur deux taux indépendants; nous choisissons γ_b et γ_\uparrow . De plus, nous imposons la condition $\gamma_\downarrow \geq \gamma_\uparrow$, c'est-à-dire que la conversion des états brillants vers les états noirs est plus rapide que celle des états noirs vers les états brillants. Nous effectuons cette procédure pour les courbes x et y et nous le répétons à chaque température. Le résumé des résultats obtenus à l'issue de cette procédure est disponible sur le tableau IV.3.

T (K)	5	20	30	40	50
Γ_1 (ns ⁻¹)	1,15	1,26	2,51	2,99	4,00
Γ_2 (ns ⁻¹)	0,48	0,78	0,92	0,79	0,89
Γ_3^x (ns ⁻¹)	0,11	0,15	0,21	0,29	0,38
Γ_3^y (ns ⁻¹)	0,14	0,19	0,25	0,30	0,40
γ_b (ns ⁻¹)	0	0,01	0,70	0,98	1,51
γ_\downarrow (ns ⁻¹)	0,08	0,15	0,16	0,14	0,16
γ_\uparrow (ns ⁻¹)	0,08	0,14	0,16	0,14	0,16

Table IV.3 – Détermination des taux de spin-flip γ_b , γ_\downarrow et γ_\uparrow pour différentes températures T .

Quelle que soit la température, les fits sur les mesures des canaux x et y nous donnent les mêmes taux Γ_1 et Γ_2 . Par contre la “queue” aux temps longs n'est pas décrite de la même manière entre ces deux canaux, menant à des valeurs de Γ_3 différentes. Cette différence peut être attribuée à une des hypothèses de notre modèle. En effet, nous avons considéré que les états brillants $|H\rangle$ et $|V\rangle$, ainsi que les états noirs $|D_1\rangle$ et $|D_2\rangle$ sont suffisamment proches en énergie pour avoir des taux uniques $\gamma_b, \gamma_\downarrow, \gamma_\uparrow$. En réalité il faudrait dédoubler chacun de ces taux pour tenir compte des écarts en énergie de ces états. Mais ceci rendrait le modèle trop complexe. Nous préférons donner les valeurs de $\gamma_b, \gamma_\downarrow$ et γ_\uparrow en effectuant la moyenne des valeurs obtenues par les canaux x et y (les trois dernières lignes du tableau). On remarque également que γ_\downarrow et γ_\uparrow sont quasi-identiques même à basse température. Ceci est sans doute une conséquence des hypothèses simplificatrices de notre modèle. Il ne faut donc pas considérer cette analyse numérique comme quantitativement précise. Néanmoins elle permet de distinguer l'évolution des différents mécanismes de spin-flip.

La figure IV.14 a) montre les taux de spin-flip γ_b et γ_\downarrow issus du tableau IV.3. A $T = 5$ K, le spin-flip direct “brillant-brillant” est très lent. En effet, notre procédure d'analyse nous mène à $\gamma_b = 0$. A cette température, les processus de spin-flip sont dominés par les spin-flips indirects “noir-brillant” avec $\gamma_\downarrow = \gamma_\uparrow = 0,076$ ns⁻¹ mais restent très lents par rapport aux taux de déclin radiatif. Cette situation change à partir de $T \geq 30$ K où γ_b augmente fortement surpassant tous les autres taux. Dans le même temps γ_\downarrow et γ_\uparrow restent plus ou moins constants autour de $0,15$ ns⁻¹. On peut alors expliquer la dépendance super-linéaire de $\gamma_{b,\downarrow}$ avec T

déduite des mesures de polarisation linéaire (voir figure IV.12 b)) par l'augmentation rapide de γ_b . Pour pouvoir comparer quantitativement ces deux mesures indépendantes, nous avons tracé sur la figure IV.14 b) $\gamma_{b,\downarrow}$ déduit des mesures de temps de vie (en rouge) et $\gamma_{b,\downarrow}$ déduit des mesures du degré de polarisation linéaire (en orange). Nous obtenons une dépendance avec la température très similaire. Cependant, les valeurs de $\gamma_{b,\downarrow}$ issues des mesures de temps de vie sont plus élevées que celles extraites des mesures de polarisation. Ceci est toutefois cohérent car les taux de spin-flip, dans ce dernier cas, sont extrapolés à la limite de puissance nulle, alors que les mesures de déclin sont réalisées à puissance faible mais non nulle.

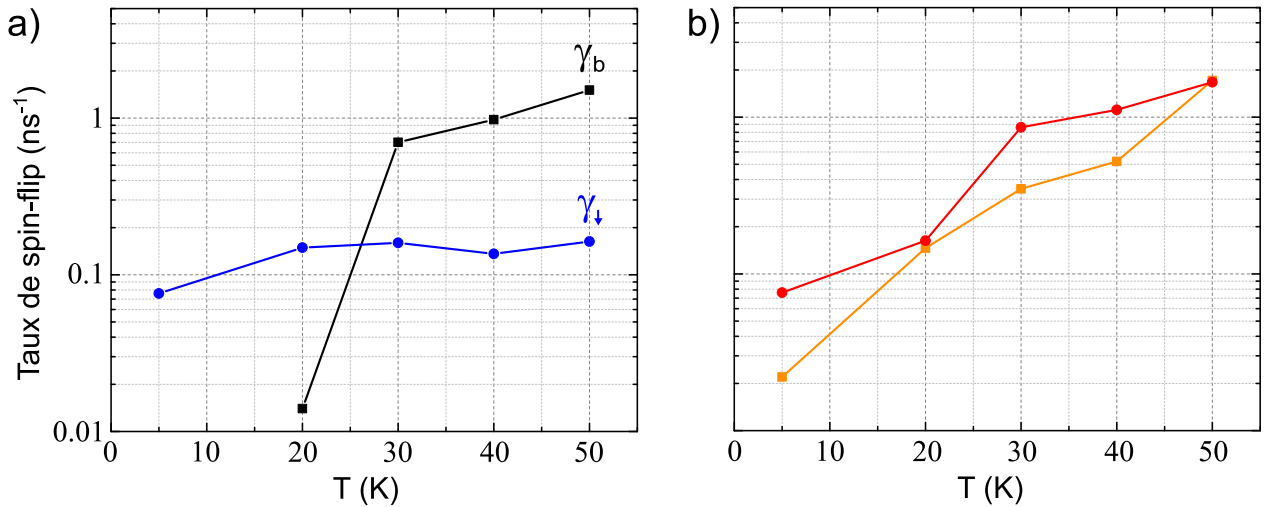


Fig. IV.14 – Effet de la température sur les processus de spin-flip. a) Taux de spin-flip γ_b (carrés noirs) et γ_\downarrow (ronds bleus) en fonction de la température. Ces valeurs sont issues de l'analyse des mesures de temps de vie (voir tableau IV.3). b) Taux $\gamma_{b,\downarrow} = \gamma_b + \gamma_\downarrow$ en fonction de la température. Les points rouges (ronds) correspondent aux valeurs issues des mesures de temps de vie. Les points oranges (carrés) correspondent aux valeurs de $\gamma_{b,\downarrow}$ issues de l'analyse du degré de polarisation linéaire à la puissance nulle (voir figure IV.12). Les deux graphiques sont tracés en échelle semi-logarithmique.

6 Conclusion

L'étude du degré de polarisation linéaire en régime continu, complétée par l'analyse des temps de vie des états excitoniques et bi-excitoniques de cette boîte quantique nous permettent de conclure que :

- A basse puissance d'excitation et à faible température ($T = 5$ K) les processus de spin-flip sont dominés par les spin-flips indirects entre états noirs et états brillants, mais ces processus restent beaucoup plus lents que les processus de recombinaison radiative (de l'ordre de 1 ns^{-1}). Nous avons montré que le spin-flip direct entre états brillants s'accélère fortement avec la température alors que les spin-flips indirects accélèrent de manière beaucoup plus modérée. A partir de $T = 50$ K nous avons la hiérarchie $\gamma_b > \Gamma_{H,V} > \gamma_{\downarrow,\uparrow}$.

- Les taux de spin-flip (γ_b ou $\gamma_{\downarrow,\uparrow}$) augmentent nettement avec la puissance d'excitation. Entre le régime des basses puissances ($P_{\text{exc}} = 50 \text{ nW}$) et le régime des hautes puissances ($P_{\text{exc}} = 30 \mu\text{W}$), les taux de spin-flip augmentent de plus de deux ordres de grandeur. Cet effet n'est pas dû à une élévation locale de la température induite par le faisceau laser d'excitation.

Des études complémentaires sont nécessaires pour déterminer les mécanismes à l'origine de ces processus de spin-flip. Cependant nous proposons une interprétation possible de nos résultats. Les phonons acoustiques sont des candidats naturels pour absorber les échanges d'énergie associés aux spin-flips au sein d'une boîte quantique. Le spin-flip indirect entre les états noirs et les états brillants de l'exciton peut être activé via des mécanismes à un seul phonon [165]. Néanmoins, l'augmentation très rapide de γ_b avec T suggère que des mécanismes d'ordre supérieur jouent un rôle, par exemple le processus à deux phonons proposé dans la Ref. [164]. L'augmentation observée des taux de spin-flip avec la puissance d'excitation n'est pas due à l'augmentation de la température du réseau cristallin. Cependant, des phonons hors-équilibre peuvent expliquer ce phénomène. Ces derniers sont créés par la relaxation des porteurs de haute énergie créés par l'excitation non résonnante. De tels phonons hors-équilibre ont été mis en évidence dans des boîtes quantiques II-VI hébergeant une unique impureté magnétique, et intégrées dans des puces non structurées [179,180]. Dans notre cas, le confinement induit par la géométrie de notre nano-fil pourrait renforcer leur concentration locale. Il existe une explication alternative à l'augmentation du taux de spin-flip avec la puissance d'excitation. Elle pourrait impliquer des porteurs de charge localisés dans l'environnement proche de la BQ et créés par l'excitation [167].

Les processus de spin-flip ne sont en général pas souhaités dans le domaine de l'optique quantique. En effet, ces processus détériorent la cohérence spectrale des sources de photons uniques : les "sauts" entre les deux excitons brillants détruisent l'indiscernabilité des photons émis. A l'heure actuelle, les sources de photons uniques les plus performantes utilisent une excitation résonnante pour, d'une part, définir précisément le moment où on injecte l'exciton dans la BQ, et d'autre part, minimiser l'excitation de potentielles sources de bruit dans l'environnement proche de la boîte [16,31,32]. Cependant, une légère excitation non résonnante est souvent utilisée pour stabiliser l'environnement électro-statique autour de la boîte quantique [181]. Notre étude suggère alors que, dans ce cas, il est important de limiter la puissance de l'excitation non résonnante pour pouvoir optimiser l'indiscernabilité des photons émis.

Il n'y a pas que des mauvais côtés à l'existence de ces processus de spin-flip, on peut parfois les utiliser à notre avantage. Prenons comme premier exemple l'émission de photons dans un unique mode optique dont la polarisation est bien contrôlée. On peut y parvenir en intégrant la boîte quantique dans une structure photonique anisotrope comme cela a déjà été fait dans des systèmes variés [161,182–184]. Lorsque les axes principaux d'une boîte quantique neutre sont à peu près alignés avec les axes principaux de la structure photonique, il est nécessaire d'avoir des processus de spin-flip plus rapides que les déclin radiatifs pour obtenir une émission polarisée sous excitation non résonnante [161]. Un spin-flip rapide est également souhaité pour pouvoir appliquer la méthode de localisation des boîtes quantiques intégrées dans un fil photonique [55] détaillée dans le chapitre III de ce manuscrit. Nous avons montré qu'il suffit d'exciter la boîte quantique avec une puissance assez élevée ou de travailler à plus haute température pour pouvoir accélérer le spin-flip.

Pour conclure, nous avons proposé et démontré une nouvelle méthode pour étudier les processus de spin-flip entre les états excitoniques d'une boîte quantique neutre. En intégrant l'émetteur dans une structure photonique qui présente une forte anisotropie optique, nous créons un déséquilibre entre les taux de recombinaison radiative des deux excitons brillants. Les spin-flips directs et indirects peuvent être mis en évidence par de simples mesures de polarisation. De plus, les mesures de temps de vie permettent de distinguer les contributions de ces deux types de spin-flips. Nous avons présenté et discuté de l'impact de la température et de la puissance d'excitation. Nos résultats peuvent être d'un grand intérêt pour le contrôle de l'émission spontanée dans un environnement photonique anisotrope, mais aussi pour le développement de sources de lumière quantiques à haute performance.

Conclusion et Perspectives

Nous avons présenté dans ce manuscrit deux études concernant les propriétés optiques de BQs intégrées dans une antenne à fil photonique. Elles s'inscrivent dans une démarche qui vise à mieux comprendre les propriétés de ces systèmes, pour améliorer leurs performances.

Nous avons, dans un premier temps, développé et démontré une technique de localisation tout-optique (et donc non destructive) qui permet de localiser précisément une BQ dans la section du nanofil. En champ proche, l'émission simultanée dans le mode guidé fondamental (HE_{11} , deux fois dégénéré en polarisation) et le second mode guidé (TE_{01} , non dégénéré) donne naissance à une figure d'interférence qui dépend fortement de la position de la boîte. Cette figure d'interférence se retrouve dans le champ lointain, que l'on peut mesurer en microscopie de Fourier résolue spectralement. La comparaison entre les cartes en champ lointain expérimentales et les simulations numériques nous a permis de déterminer la position transverse des émetteurs au sein du fil avec une très bonne précision (± 10 nm sachant que le rayon typique des antennes est entre 100 et 150 nm). Pour pouvoir réaliser cette comparaison nous avons décrit l'émetteur (la BQ) comme la somme de dipôles optiques radial et orthoradial mutuellement incohérent. Ceci est rigoureusement justifié pour le cas des excitons chargés sous excitation non-résonante et du bi-exciton neutre sans conditions particulières. Dans le cas de l'exciton neutre, cette description est valide uniquement si le spin-flip entre les états brillants de l'exciton est bien plus rapide que les temps de recombinaison radiative pour égaliser les populations de ces états. Cette technique de localisation est utilisable sur une large plage de diamètre ($0.20\lambda < d < 0.31\lambda$ dans le cas du GaAs) et est donc compatible avec les fils qui offrent un couplage optimal avec le mode guidé fondamental. En effet, dans la plage $0.21\lambda < d < 0.28\lambda$, plus de 90% de l'émission spontanée d'un émetteur sur l'axe est couplée au mode guidé fondamental HE_{11} .

Pour compléter cette étude il serait intéressant de la comparer avec la technique de localisation opto-mécanique développée récemment dans le groupe de J-P. Poizat [144]. Cette dernière exploite des vibrations mécaniques pour induire un stress oscillant dans la section du fil. En excitant un mode de flexion, on génère un stress oscillant qui fait osciller l'énergie d'émission de l'émetteur. L'amplitude du stress mécanique présente un fort gradient spatial transverse : l'amplitude de l'oscillation de l'énergie d'émission de la BQ permet alors de remonter à la distance à l'axe de l'émetteur. La phase de l'oscillation permet de savoir de quel côté se trouve la BQ. En exploitant le second mode de flexion, qui présente une direction d'oscillation perpendiculaire à celle du premier, on obtient une localisation en deux dimensions de l'émetteur. Dans le même ordre d'idées, on pourrait également comparer la localisation optique démontrée dans ce manuscrit à des expériences de détermination structurales, comme la tomographie TEM ou par diffraction X cohérente. Concernant ce dernier point, on peut

citer des expériences préliminaires réalisées à l'ESRF dans le cadre d'une collaboration avec Vincent Favre-Nicolin.

Nous avons vu que la position de l'émetteur dans une antenne à fil photonique est importante, car elle conditionne la force de l'interaction lumière-matière et le couplage à certains canaux de décohérence. Nous avons pu vérifier le premier point expérimentalement. Comme attendu, on observe une augmentation du temps de vie excitonique lorsque l'émetteur se rapproche des flancs du fil. A l'avenir, il serait aussi intéressant de corrélérer la position spatiale de l'émetteur avec sa largeur de raie. Pour optimiser cette dernière, il est préférable de recourir à une excitation résonante de la BQ.

La seconde étude a porté sur les mécanismes de spin-flip entre les différents états excitoniques d'une BQ neutre. Cette étude a été en partie motivée par le développement de notre technique de localisation tout-optique. Comme nous l'avons vu plus haut, un exciton neutre peut être localisé simplement si des spin-flips rapides viennent symétriser les populations des deux états excitoniques brillants. D'autre part, des études anciennes de contrôle de l'émission spontanée dans des structures monomodes (au sens de la polarisation) semblaient suggérer l'existence de ces spin-flips [161]. Toutefois, aucune étude poussée n'avait sondé ces processus en détail. Pour révéler ces spin-flips, nous avons intégré la BQ dans une structure photonique anisotrope : ici un fil photonique avec une section elliptique. Cette anisotropie crée un déséquilibre entre les taux de recombinaison radiative des deux excitons brillants. Les spin-flips mélangent les populations des différents niveaux et influencent donc le degré de polarisation linéaire de l'émission excitonique. Sous excitation non résonnante, la mesure de cette quantité nous a permis de mettre en évidence les processus de spin-flip directs (entre états brillants) et indirects (via un exciton noir) sur une large plage d'excitation. De plus, dans le régime des basses puissances, des expériences complémentaires de déclin de la photoluminescence résolues en temps nous ont permis de séparer les contributions de ces deux types de spin-flip. Cette étude menée sur une BQ particulière nous a permis de conclure que les processus de spin-flip dépendent fortement de la puissance d'excitation. En effet, à basse puissance, le spin-flip est beaucoup plus lent que la recombinaison radiative. A haute puissance, les taux de spin-flip augmentent de plus de deux ordres de grandeur. De plus, nous avons observé que le spin-flip direct s'accélère fortement avec la température alors que les spin-flips indirects accélèrent de manière beaucoup plus modérée. Une étude statistique a également été menée sur une quinzaine d'antennes du même échantillon nous montrant que pour 60% des cas, un spin-flip rapide était présent dans le régime des basses puissances et à température cryogénique. Ceci nous montre aussi que les processus de spin-flip diffèrent grandement d'une BQ à une autre, même si elles proviennent d'un même échantillon.

Les mécanismes à l'origine des processus de spin-flips au sein de nos systèmes restent encore à éclaircir. Les phonons acoustiques représentent un candidat naturel pour expliquer ces processus. Le spin-flip indirect entre les états noirs et les états brillants de l'exciton peut être activé via l'absorption ou l'émission d'un seul phonon [165]. Le spin-flip direct entre états brillants et sa forte augmentation avec la température peut être compris, quant à elle, par des mécanismes d'ordre supérieur, impliquant par exemple deux phonons [164]. Notre étude nous a également permis de conclure que l'augmentation observée des taux de spin-flip avec la puissance d'excitation n'est pas due à l'augmentation de la température du réseau cristallin.

Cependant, des phonons hors-équilibre créés par la relaxation des porteurs de haute énergie issus de l'excitation non résonnante pourraient expliquer ce phénomène [179,180].

Même si les processus de spin-flip sont en général néfastes pour les technologies quantiques de l'information, ils sont parfois souhaitables. C'est par exemple le cas pour l'émission de photons dans un unique mode optique dont la polarisation est bien contrôlée [161,182–184]. Comme mentionné plus haut, la présence d'un spin-flip rapide entre états brillants est également nécessaire pour pouvoir appliquer la méthode de localisation pour des excitons neutres. Notre étude montre qu'il suffit d'utiliser une puissance d'excitation non résonnante élevée pour atteindre ce régime.

Les deux études que nous avons développées au cours de ma thèse sont intéressantes pour le développement de sources de lumière quantique utilisant des BQs intégrées dans des nanofils. Un enjeu important est d'obtenir des photons indiscernables, une ressource cruciale pour les technologies quantiques. L'équipe travaille actuellement dans deux directions complémentaires. La première est de comprendre les sources de décohérence dans nos systèmes. Les processus de spin-flip constituent une de ces sources. A côté des suspects habituels (comme le bruit de charge), présents dans la plupart des systèmes semi-conducteurs, la thèse de Saptarshi Kotal a mis en évidence une source de bruit spécifique à la géométrie nanofil. Même à température cryogénique, les vibrations thermiques des modes mécaniques induisent un élargissement spectral très significatif. Des solutions, qui reposent sur une ingénierie mécanique des fils photoniques, ont été proposées pour limiter ces effets. La seconde direction est l'accélération de l'émission spontanée, pour rendre l'émetteur moins sensible aux différentes sources de bruits. En particulier, l'équipe développe actuellement des nanocavités avec une large bande passante. L'objectif est de bénéficier de l'effet Purcell pour accélérer significativement l'émission spontanée de la BQ. Le volume modal de la cavité est suffisamment faible pour atteindre un facteur de Purcell très significatif (de l'ordre de 7) avec un facteur de qualité optique modeste (typiquement 40). Ceci se traduit directement par une large bande passante (20 nm), très intéressante pour réaliser des sources de photons uniques accordable en longueur d'onde, ou pour collecter les photons issus de la cascade radiative du bi-exciton. Dans ces nanocavités, le couplage au mode fondamental (HE_{11}) est augmenté d'un facteur 3 par rapport à une antenne à fil photonique reposant sur un miroir. Le mode TE_{01} est peu affecté par les effets de cavité. Ainsi, il sera possible à l'avenir d'utiliser l'imagerie de Fourier résolue spectralement pour localiser un émetteur au sein de la nanocavité.

Ces nano-cavités sont aussi des systèmes de choix pour réaliser des sources de paires de photons enchevêtrés en polarisation, en accélérant et en collectant la cascade radiative du bi-exciton. Les processus de spin-flip mis en évidence au cours de cette thèse viennent perturber cette cascade radiative, en générant des sauts aléatoires entre les états excitoniques intermédiaires. Il sera intéressant à l'avenir de vérifier qu'une excitation résonnante du bi-exciton (excitation à deux photons pulsée) permet de limiter ces phénomènes. D'autre part, l'émission de paires de photons enchevêtrés demande une structure photonique isotrope, pour préserver la symétrie des deux chemins de recombinaison. Une anisotropie résiduelle est ici une limitation. La compréhension fine des effets de polarisation dans un environnement anisotrope, développée dans le cadre des études de spin-flip, sera très utile dans ce contexte.

Références

- [1] O'Brien J. L., Furusawa A. & Vučković J. *Photonic quantum technologies*. [Nature Photonics](#) **3**, 687 (2009). [p. 1]
- [2] Michler P. (ed.) *Quantum Dots for Quantum Information Technologies* (Springer International Publishing, 2017). [p. 1]
- [3] 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 (2000). [p. 2]
- [4] Senellart P., Solomon G. & White A. *High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources*. [Nature Nanotechnology](#) **12**, 1026 (2017). [pp. 2, 97]
- [5] Akopian N., Lindner N. H., Poem E., Berlatzky Y., Avron J., Gershoni D., Gerardot B. D. & Petroff P. M. *Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots*. [Phys. Rev. Lett.](#) **96**, 130501 (2006). [p. 2]
- [6] Huber D., Reindl M., Aberl J., Rastelli A. & Trotta R. *Semiconductor quantum dots as an ideal source of polarization-entangled photon pairs on-demand : A review*. [J. Opt.](#) **20**, 073002 (2018). [pp. 2, 97]
- [7] Schwartz I., Cogan D., Schmidgall E. R., Don Y., Gantz L., Kenneth O., Lindner N. H. & Gershoni D. *Deterministic generation of a cluster state of entangled photons*. [Science](#) **354**, 434 (2016). [pp. 2, 97]
- [8] Wang H., Le-Van Q., Aassime A., Roux X. L., Charra F., Chauvin N. & Degiron A. *Electroluminescence of Colloidal Quantum Dots in Electrical Contact with Metallic Nanoparticles*. [Advanced Optical Materials](#) **6**, 1700658 (2018). [p. 2]
- [9] Parak W. J., Pellegrino T. & Plank C. *Labelling of cells with quantum dots*. [Nanotechnology](#) **16**, R9 (2005). [pp. 2, 10]
- [10] Rizvi S. B., Ghaderi S., Keshtgar M. & Seifalian A. M. *Semiconductor quantum dots as fluorescent probes for in vitro and in vivo bio-molecular and cellular imaging*. [Nano Reviews](#) **1**, 5161 (2010). [pp. 2, 10]
- [11] Won Y.-H., Cho O., Kim T., Chung D.-Y., Kim T., Chung H., Jang H., Lee J., Kim D. & Jang E. *Highly efficient and stable InP/ZnSe/ZnS quantum dot light-emitting diodes*. [Nature](#) **575**, 634 (2019). [p. 2]
- [12] Johansen J., Stobbe S., Nikolaev I. S., Lund-Hansen T., Kristensen P. T., Hvam J. M., Vos W. L. & Lodahl P. *Size dependence of the wavefunction of self-assembled InAs quantum dots from time-resolved optical measurements*. [Phys. Rev. B](#) **77**, 073303 (2008). [pp. 2, 62, 73, 99]

- [13] Bleuse J., Claudon J., Creasey M., Malik N. S., Gérard J.-M., Maksymov I., Hugonin J.-P. & Lalanne P. *Inhibition, Enhancement, and Control of Spontaneous Emission in Photonic Nanowires*. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 103601 (2011). [pp. 2, 3, 40, 41, 57, 62, 63, 79, 85, 99, 101, 109]
- [14] Yuan Z., Kardynal B. E., Stevenson R. M., Shields A. J., Lobo C. J., Cooper K., Beattie N. S., Ritchie D. A. & Pepper M. *Electrically Driven Single-Photon Source*. *Science* **295**, 102 (2002). [p. 2]
- [15] 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*. *Phys. Rev. B* **78**, 073301 (2008). [pp. 2, 33]
- [16] He Y.-M., He Y., Wei Y.-J., Wu D., Atatüre M., Schneider C., Höfling S., Kamp M., Lu C.-Y. & Pan J.-W. *On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability*. *Nature Nanotechnology* **8**, 213 (2013). [pp. 2, 128]
- [17] Kuhlmann A. V., Pechtel J. H., Houel J., Ludwig A., Reuter D., Wieck A. D. & Warburton R. J. *Transform-limited single photons from a single quantum dot*. *Nature Communications* **6**, 8204 (2015). [p. 2]
- [18] Kuhlmann A. V., Houel J., Ludwig A., Greuter L., Reuter D., Wieck A. D., Poggio M. & Warburton R. J. *Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device*. *Nature Physics* **9**, 570 (2013). [pp. 2, 3]
- [19] Arnold C., Loo V., Lemaître A., Sagnes I., Krebs O., Voisin P., Senellart P. & Lanco L. *Cavity-Enhanced Real-Time Monitoring of Single-Charge Jumps at the Microsecond Time Scale*. *Phys. Rev. X* **4**, 021004 (2014). [p. 2]
- [20] Besombes L., Kheng K., Marsal L. & Mariette H. *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*. *Phys. Rev. B* **63**, 155307 (2001). [p. 3]
- [21] 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*. *Phys. Rev. B* **68**, 233301 (2003). [p. 3]
- [22] Enderlin A., Ravaro M., Voliotis V., Grousson R. & Wang X.-L. *Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms*. *Phys. Rev. B* **80**, 085301 (2009). [p. 3]
- [23] Denning E. V., Iles-Smith J., Gregersen N. & Mork J. *Phonon effects in quantum dot single-photon sources*. *Opt. Mater. Express* **10**, 222 (2020). [p. 3]
- [24] Barnes W., Björk G., Gérard J., Jonsson P., Wasey J., Worthing P. & Zwiller V. *Solid-state single photon sources : Light collection strategies*. *Eur. Phys. J. D* **18**, 197 (2002). [p. 3]
- [25] Lodahl P., Mahmoodian S. & Stobbe S. *Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures*. *Rev. Mod. Phys.* **87**, 347 (2015). [pp. 3, 32, 35, 39, 78]
- [26] 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*. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1110 (1998). [pp. 3, 35]
- [27] Gayral B., Gérard J.-M., Sermage B., Lemaître A. & Dupuis C. *Time-resolved probing of the Purcell effect for InAs quantum boxes in GaAs microdisks*. *Appl. Phys. Lett.* **78**, 2828 (2001). [pp. 3, 35]

- [28] Englund D., Fattal D., Waks E., Solomon G., Zhang B., Nakaoka T., Arakawa Y., Yamamoto Y. & Vučković J. *Controlling the Spontaneous Emission Rate of Single Quantum Dots in a Two-Dimensional Photonic Crystal*. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 013904 (2005). [pp. 3, 34]
- [29] Ba Hoang T., Beetz J., Midolo L., Skacel M., Lermer M., Kamp M., Höfling S., Balet L., Chauvin N. & Fiore A. *Enhanced spontaneous emission from quantum dots in short photonic crystal waveguides*. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061122 (2012). [p. 3]
- [30] Santori C., Fattal D., Vučković J., Solomon G. S. & Yamamoto Y. *Indistinguishable photons from a single-photon device*. *Nature* **419**, 594 (2002). [p. 3]
- [31] Somaschi N., Giesz V., De Santis L., Loredò J. C., Almeida M. P., Hornecker G., Portalupi S. L., Grange T., Antón C., Demory J., Gómez C., Sagnes I., Lanzillotti-Kimura N. D., Lemaître A., Auffèves A., White A. G., Lanco L. & Senellart P. *Near-optimal single-photon sources in the solid state*. *Nature Phot.* **10**, 340 (2016). [pp. 3, 36, 128]
- [32] Ding X., He Y., Duan Z.-C., Gregersen N., Chen M.-C., Unsleber S., Maier S., Schneider C., Kamp M., Höfling S., Lu C.-Y. & Pan J.-W. *On-Demand Single Photons with High Extraction Efficiency and Near-Unity Indistinguishability from a Resonantly Driven Quantum Dot in a Micropillar*. *Phys. Rev. Lett.* **116**, 020401 (2016). [pp. 3, 128]
- [33] Grange T., Somaschi N., Antón C., De Santis L., Coppola G., Giesz V., Lemaître A., Sagnes I., Auffèves A. & Senellart P. *Reducing Phonon-Induced Decoherence in Solid-State Single-Photon Sources with Cavity Quantum Electrodynamics*. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 253602 (2017). [p. 3]
- [34] Zhang J. P., Chu D. Y., Wu S. L., Ho S. T., Bi W. G., Tu C. W. & Tiberio R. C. *Photonic-Wire Laser*. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2678 (1995). [pp. 3, 40]
- [35] Arcari M., Söllner I., Javadi A., Lindskov Hansen S., Mahmoodian S., Liu J., Thyrrstrup H., Lee E. H., Song J. D., Stobbe S. & Lodahl P. *Near-Unity Coupling Efficiency of a Quantum Emitter to a Photonic Crystal Waveguide*. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 093603 (2014). [pp. 3, 40]
- [36] Friedler I., Sauvan C., Hugonin J. P., Lalanne P., Claudon J. & Gérard J. M. *Solid-state single photon sources : The nanowire antenna*. *Opt. Express* **17**, 2095 (2009). [pp. 3, 40, 41, 56, 60, 61, 63, 66]
- [37] Claudon J., Gregersen N., Lalanne P. & Gérard J.-M. *Harnessing Light with Photonic Nanowires : Fundamentals and Applications to Quantum Optics*. *ChemPhysChem* **14**, 2393 (2013). [pp. 3, 5, 41, 48, 56, 64, 79, 82]
- [38] Friedler I., Lalanne P., Hugonin J. P., Claudon J., Gérard J. M., Beveratos A. & Robert-Philip I. *Efficient photonic mirrors for semiconductor nanowires*. *Opt. Lett.* **33**, 2635–2637 (2008). [pp. 3, 41, 63]
- [39] Gregersen N., Nielsen T. R., Claudon J., Gérard J.-M. & Mørk J. *Controlling the emission profile of a nanowire with a conical taper*. *Opt. Lett.* **33**, 1693 (2008). [pp. 3, 4, 41, 60, 64, 65]
- [40] Claudon J., Bleuse J., Malik N. S., Bazin M., Jaffrennou P., Gregersen N., Sauvan C., Lalanne P. & Gérard J.-M. *A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire*. *Nature Phot.* **4**, 174 (2010). [pp. 4, 5, 39, 41, 42, 57, 65, 78, 79, 101]

- [41] Reimer M. E., Bulgarini G., Akopian N., Hocevar M., Bavinck M. B., Verheijen M. A., Bakkers E. P. A. M., Kouwenhoven L. P. & Zwiller V. *Bright single-photon sources in bottom-up tailored nanowires*. *Nat Commun* **3**, 1 (2012). [pp. 4, 41, 65, 77, 78, 79]
- [42] Jaffal A., Redjem W., Regreny P., Nguyen H. S., Cueff S., Letartre X., Patriarche G., Rousseau E., Cassabois G., Gendry M. & Chauvin N. *InAs quantum dot in a needlelike tapered InP nanowire : A telecom band single photon source monolithically grown on silicon*. *Nanoscale* **11**, 21847 (2019). [pp. 4, 41, 77]
- [43] Munsch M., Malik N. S., Dupuy E., Delga A., Bleuse J., Gérard J.-M., Claudon J., Gregersen N. & Mørk J. *Dielectric GaAs Antenna Ensuring an Efficient Broadband Coupling between an InAs Quantum Dot and a Gaussian Optical Beam*. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 177402 (2013). [pp. 4, 41, 65, 78, 79]
- [44] Stepanov P., Delga A., Gregersen N., Peinke E., Munsch M., Teissier J., Mørk J., Richard M., Bleuse J., Gérard J.-M. & Claudon J. *Highly directive and Gaussian far-field emission from “giant” photonic trumpets*. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 141106 (2015). [pp. 4, 41, 78, 79, 82, 88, 91]
- [45] Bulgarini G., Reimer M. E., Bouwes Bavinck M., Jöns K. D., Dalacu D., Poole P. J., Bakkers E. P. A. M. & Zwiller V. *Nanowire Waveguides Launching Single Photons in a Gaussian Mode for Ideal Fiber Coupling*. *Nano Lett.* **14**, 4102–4106 (2014). [pp. 4, 41, 79]
- [46] Kremer P. E., Dada A. C., Kumar P., Ma Y., Kumar S., Clarke E. & Gerardot B. D. *Strain-tunable quantum dot embedded in a nanowire antenna*. *Phys. Rev. B* **90**, 201408 (2014). [pp. 4, 78, 79]
- [47] Tumanov D., Vaish N., Nguyen H. A., Curé Y., Gérard J.-M., Claudon J., Donatini F. & Poizat J.-P. *Static strain tuning of quantum dots embedded in a photonic wire*. *Appl. Phys. Lett.* **112**, 123102 (2018). [pp. 4, 78]
- [48] Versteegh M. A. M., Reimer M. E., Jöns K. D., Dalacu D., Poole P. J., Gulinatti A., Giudice A. & Zwiller V. *Observation of strongly entangled photon pairs from a nanowire quantum dot*. *Nat. Commun.* **5**, 1 (2014). [pp. 4, 59, 78, 79]
- [49] Huber T., Predojević A., Khoshnegar M., Dalacu D., Poole P. J., Majedi H. & Weihs G. *Polarization Entangled Photons from Quantum Dots Embedded in Nanowires*. *Nano Lett.* **14**, 7107 (2014). [pp. 4, 59, 77, 78, 79]
- [50] Khoshnegar M., Huber T., Predojević A., Dalacu D., Prilmüller M., Lapointe J., Wu X., Tamarat P., Lounis B., Poole P., Weihs G. & Majedi H. *A solid state source of photon triplets based on quantum dot molecules*. *Nature Communications* **8**, 15716 (2017). [pp. 4, 78, 79]
- [51] Nguyen H. A., Grange T., Reznichenko B., Yeo I., de Assis P.-L., Tumanov D., Fratini F., Malik N. S., Dupuy E., Gregersen N., Auffèves A., Gérard J.-M., Claudon J. & Poizat J.-P. *Giant nonlinear interaction between two optical beams via a quantum dot embedded in a photonic wire*. *Phys. Rev. B* **97**, 201106 (2018). [pp. 4, 79]
- [52] Mermillod Q., Jakubczyk T., Delmonte V., Delga A., Peinke E., Gérard J.-M., Claudon J. & Kasprzak J. *Harvesting, Coupling, and Control of Single-Exciton Coherences in Photonic Waveguide Antennas*. *Phys. Rev. Lett.* **116**, 163903 (2016). [pp. 4, 79, 87]

- [53] Munsch M., Kuhlmann A. V., Cadeddu D., Gérard J.-M., Claudon J., Poggio M. & Warburton R. J. *Resonant driving of a single photon emitter embedded in a mechanical oscillator*. *Nat. Commun.* **8**, 1 (2017). [pp. 4, 73, 77, 79, 87]
- [54] Artioli A., Kotal S., Gregersen N., Verlot P., Gérard J.-M. & Claudon J. *Design of Quantum Dot-Nanowire Single-Photon Sources that are Immune to Thermomechanical Decoherence*. *Phys. Rev. Lett.* **123**, 247403 (2019). [pp. 4, 77]
- [55] Fons R., Osterkryger A. D., Stepanov P., Gautier E., Bleuse J., Gérard J.-M., Gregersen N. & Claudon J. *All-Optical Mapping of the Position of Quantum Dots Embedded in a Nanowire Antenna*. *Nano Lett.* **18**, 6434 (2018). [pp. 5, 57, 101, 128]
- [56] Chauvin N., Zinoni C., Francardi M., Gerardino A., Balet L., Alloing B., Li L. H. & Fiore A. *Controlling the charge environment of single quantum dots in a photonic-crystal cavity*. *Phys. Rev. B* **80**, 241306 (2009). [p. 5]
- [57] Adachi S. *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds*. In *Physical Properties of III-V Semiconductor Compounds* (1992), wiley-vch edn. [p. 10]
- [58] Alivisatos A. P. *Semiconductor Clusters, Nanocrystals, and Quantum Dots*. *Science* **271**, 933 (1996). [p. 10]
- [59] Coe S., Woo W.-K., Bawendi M. & Bulović V. *Electroluminescence from single monolayers of nanocrystals in molecular organic devices*. *Nature* **420**, 800 (2002). [pp. 10, 22]
- [60] Goldstein L., Glas F., Marzin J. Y., Charasse M. N. & Le Roux G. *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices*. *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099 (1985). [p. 11]
- [61] Xu S. J., Wang X. C., Chua S. J., Wang C. H., Fan W. J., Jiang J. & Xie X. G. *Effects of rapid thermal annealing on structure and luminescence of self-assembled InAs/GaAs quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 3335–3337 (1998). [p. 12]
- [62] YU P. & Cardona M. *Fundamentals of Semiconductors : Physics and Materials Properties*. In *Fundamentals of Semiconductors : Physics and Materials Properties* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2010), fourth edn. [pp. 13, 15]
- [63] Kane E. O. *Band structure of indium antimonide*. *J. Phys. Chem. Solids* **1**, 249 (1957). [p. 13]
- [64] Bastard G. *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures*. In *Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures* (EDP SCIENCES, 1988). [pp. 13, 16]
- [65] Marzin J. Y. & Bastard G. *Calculation of the energy levels in InAsGaAs quantum dots*. *Solid State Commun.* **92**, 437 (1994). [pp. 16, 17]
- [66] Marzin J., Gérard J., Voisin P. & Brumt J. *Chapter 3 Optical Studies of Strained III-V Heterolayers*. In *Semiconductors and Semimetals*, vol. 32, 55–118 (Elsevier, 1990). [p. 16]
- [67] Catellani A. & Ballone P. *Islands at semiconductor interfaces*. *Phys. Rev. B* **45**, 14197 (1992). [p. 16]
- [68] Patella F., Nufri S., Arciprete F., Fanfoni M., Placidi E., Sgarlata A. & Balzarotti A. *Tracing the two- to three-dimensional transition in the InAs/GaAs(001) heteroepitaxial growth*. *Phys. Rev. B* **67**, 205308 (2003). [pp. 16, 25]

- [69] 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*. *J. Cryst. Growth* **150**, 351 (1995). [p. 16]
- [70] Cassabois G. *Origines et limites du modèle de l'atome artificiel pour une boîte quantique de semiconducteurs*. thesis Université Pierre et Marie Curie - Paris VI (2006). [pp. 17, 23]
- [71] Leonard D., Krishnamurthy M., Reaves C. M., Denbaars S. P. & Petroff P. M. *Direct formation of quantum-sized dots from uniform coherent islands of InGaAs on GaAs surfaces*. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203 (1993). [p. 17]
- [72] Bayer M., Ortner G., Stern O., Kuther A., Gorbunov A. A., Forchel A., Hawrylak P., Fafard S., Hinzer K., Reinecke T. L., Walck S. N., Reithmaier J. P., Klopff F. & Schäfer F. *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B* **65**, 195315 (2002). [pp. 17, 25, 26]
- [73] 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*. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4114–4117 (1999). [p. 21]
- [74] Htoon H., Cox P. J. & Klimov V. I. *Structure of Excited-State Transitions of Individual Semiconductor Nanocrystals Probed by Photoluminescence Excitation Spectroscopy*. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 187402 (2004). [p. 22]
- [75] Ferreira R. & Bastard G. *Phonon-assisted capture and intradot Auger relaxation in quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 2818 (1999). [p. 23]
- [76] Gérard J. M., Cabrol O. & Sermage B. *InAs quantum boxes : Highly efficient radiative traps for light emitting devices on Si*. *Appl. Phys. Lett.* **68**, 3123 (1996). [p. 23]
- [77] Lelong P. & Bastard G. *Binding energies of excitons and charged excitons in GaAsGa(In)As quantum dots*. *Solid State Commun.* **98**, 819 (1996). [p. 24]
- [78] Warburton R. J., Dürr C. S., Karrai K., Kotthaus J. P., Medeiros-Ribeiro G. & Petroff P. M. *Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5282 (1997). [p. 24]
- [79] Finley J. J., Ashmore A. D., Lemaître A., Mowbray D. J., Skolnick M. S., Itskevich I. E., Maksym P. A., Hopkinson M. & Krauss T. F. *Charged and neutral exciton complexes in individual self-assembled InGaAs quantum dots*. *Phys. Rev. B* **63**, 073307 (2001). [p. 24]
- [80] Pikus G. E. & Bir G. L. *Exchange Interaction in Excitons in Semiconductors*. Soviet Physics JETP **33**, 7 (1971). [p. 25]
- [81] Hasegawa Y., Kiyama H., Xue Q. K. & Sakurai T. *Atomic structure of faceted planes of three-dimensional InAs islands on GaAs(001) studied by scanning tunneling microscope*. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2265 (1998). [p. 25]
- [82] Gerardot B. D., Shtrichman I., Hebert D. & Petroff P. M. *Tuning of the electronic levels in vertically stacked InAs/GaAs quantum dots using crystal growth kinetics*. *J. Cryst. Growth* **252**, 44 (2003). [p. 25]
- [83] Migliorato M. A., Powell D., Zibik E. A., Wilson L. R., Fearn M., Jefferson J. H., Steer M. J., Hopkinson M. & Cullis A. G. *Anisotropy of the electron energy levels in In_xGa_{1-x}As/GaAs quantum dots with non uniform composition*. *Physica E* **26**, 436 (2005). [p. 25]

- [84] Besombes L., Kheng K. & Martrou D. *Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface*. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 425 (2000). [p. 25]
- [85] Bayer M., Kuther A., Forchel A., Gorbunov A., Timofeev V. B., Schäfer F., Reithmaier J. P., Reinecke T. L. & Walck S. N. *Electron and Hole g Factors and Exchange Interaction from Studies of the Exciton Fine Structure in $\text{In}_{0.60}\text{Ga}_{0.40}$ Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1748 (1999). [pp. 26, 104]
- [86] Messiah A. *Quantum Mechanics*. In *Quantum Mechanics* (Dover Publications, 1999). [p. 27]
- [87] Goy P., Raimond J. M., Gross M. & Haroche S. *Observation of Cavity-Enhanced Single-Atom Spontaneous Emission*. *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1903 (1983). [p. 32]
- [88] Gérard J. M., Legrand B., Gayral B., Costard E., Sermage B., Kuszelewicz R., Barrier D., Thierry-Mieg V., Rivera T. & Marzin J. Y. *InAs quantum boxes in GaAs/AlAs pillar microcavities : From spectroscopic investigations to spontaneous emission control*. *Physica E* **2**, 804 (1998). [p. 32]
- [89] Gerard J.-M. & Gayral B. *Strong Purcell effect for InAs quantum boxes in three-dimensional solid-state microcavities*. *J. Lightwave Tech.* **17**, 2089 (1999). [p. 32]
- [90] Hennessy K., Badolato A., Winger M., Gerace D., Atatüre M., Gulde S., Fält S., Hu E. L. & Imamoglu A. *Quantum nature of a strongly coupled single quantum dot–cavity system*. *Nature* **445**, 896 (2007). [pp. 33, 34, 35, 36]
- [91] Reithmaier J. P., Sek 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 (2004). [pp. 33, 35]
- [92] Peter E., Senellart P., Martrou D., Lemaître A., Hours J., Gérard J. M. & Bloch J. *Exciton-Photon Strong-Coupling Regime for a Single Quantum Dot Embedded in a Microcavity*. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 067401 (2005). [p. 33]
- [93] 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 Comm.* **4**, 1 (2013). [p. 34]
- [94] Loo V., Lanco L., Lemaître A., Sagnes I., Krebs O., Voisin P. & Senellart P. *Quantum dot-cavity strong-coupling regime measured through coherent reflection spectroscopy in a very high- Q micropillar*. *Appl. Phys. Lett.* **97**, 241110 (2010). [p. 34]
- [95] Reitzenstein S., Hofmann C., Gorbunov A., Strauß M., Kwon S. H., Schneider C., Löffler A., Höfling S., Kamp M. & Forchel A. *AlAs/GaAs micropillar cavities with quality factors exceeding 150.000*. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 251109 (2007). [p. 34]
- [96] Akahane Y., Asano T., Song B.-S. & Noda S. *High- Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal*. *Nature* **425**, 944 (2003). [p. 34]
- [97] Lai Y., Pirodda S., Urbinati G., Gerace D., Minkov M., Savona V., Badolato A. & Galli M. *Genetically designed $L3$ photonic crystal nanocavities with measured quality factor exceeding one million*. *Appl. Phys. Lett.* **104**, 241101 (2014). [p. 34]
- [98] Srinivasan K. & Painter O. *Linear and nonlinear optical spectroscopy of a strongly coupled microdisk–quantum dot system*. *Nature* **450**, 862 (2007). [p. 35]
- [99] Borselli M., Johnson T. J. & Painter O. *Beyond the Rayleigh scattering limit in high- Q silicon microdisks : Theory and experiment*. *Opt. Express* **13**, 1515 (2005). [p. 35]

- [100] Liu F., Brash A. J., O'Hara J., Martins L. M. P. P., Phillips C. L., Coles R. J., Royall B., Clarke E., Bentham C., Prtljaga N., Itskevich I. E., Wilson L. R., Skolnick M. S. & Fox A. M. *High Purcell factor generation of indistinguishable on-chip single photons.* *Nature Nano.* **13**, 835 (2018). [p. 35]
- [101] Badolato A., Hennessy K., Atatüre M., Dreiser J., Hu E., Petroff P. M. & Imamoglu A. *Deterministic Coupling of Single Quantum Dots to Single Nanocavity Modes.* *Science* **308**, 1158–1161 (2005). [p. 36]
- [102] Gallo P., Felici M., Dwir B., Atlasov K. A., Karlsson K. F., Rudra A., Mohan A., Biasiol G., Sorba L. & Kapon E. *Integration of site-controlled pyramidal quantum dots and photonic crystal membrane cavities.* *Appl. Phys. Lett.* **92**, 263101 (2008). [p. 36]
- [103] Dalacu D., Mnaymneh K., Sazonova V., Poole P. J., Aers G. C., Lapointe J., Cheriton R., SpringThorpe A. J. & Williams R. *Deterministic emitter-cavity coupling using a single-site controlled quantum dot.* *Phys. Rev. B* **82**, 033301 (2010). [p. 36]
- [104] Dousse A., Lanco L., Suffczyński J., Semenova E., Miard A., Lemaître A., Sagnes I., Roblin C., Bloch J. & Senellart P. *Controlled Light-Matter Coupling for a Single Quantum Dot Embedded in a Pillar Microcavity Using Far-Field Optical Lithography.* *Phys. Rev. Lett.* **101**, 267404 (2008). [p. 36]
- [105] Knill E., Laflamme R. & Milburn G. J. *A scheme for efficient quantum computation with linear optics.* *Nature* **409**, 46 (2001). [p. 36]
- [106] Chang D. E., Sørensen A. S., Hemmer P. R. & Lukin M. D. *Quantum Optics with Surface Plasmons.* *Phys. Rev. Lett.* **97**, 053002 (2006). [p. 38]
- [107] Akimov A. V., Mukherjee A., Yu C. L., Chang D. E., Zibrov A. S., Hemmer P. R., Park H. & Lukin M. D. *Generation of single optical plasmons in metallic nanowires coupled to quantum dots.* *Nature* **450**, 402 (2007). [pp. 38, 39]
- [108] Gan C. H., Hugonin J. P. & Lalanne P. *Proposal for Compact Solid-State III-V Single-Plasmon Sources.* *Phys. Rev. X* **2**, 021008 (2012). [p. 38]
- [109] Quan Q., Bulu I. & Lončar M. *Broadband waveguide QED system on a chip.* *Phys. Rev. A* **80**, 011810 (2009). [p. 38]
- [110] Sapienza L., Thyrrstrup H., Stobbe S., Garcia P. D., Smolka S. & Lodahl P. *Cavity Quantum Electrodynamics with Anderson-Localized Modes.* *Science* **327**, 1352 (2010). [p. 39]
- [111] Yablonovitch E. *Photonic band-gap structures.* *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 283 (1993). [p. 40]
- [112] Lecamp G., Lalanne P. & Hugonin J. P. *Very Large Spontaneous-Emission Beta Factors in Photonic-Crystal Waveguides.* *Phys. Rev. Lett.* **99**, 023902 (2007). [p. 40]
- [113] Manga Rao V. S. C. & Hughes S. *Single quantum-dot Purcell factor and beta factor in a photonic crystal waveguide.* *Phys. Rev. B* **75**, 205437 (2007). [p. 40]
- [114] Walther P., Resch K. J., Rudolph T., Schenck E., Weinfurter H., Vedral V., Aspelmeyer M. & Zeilinger A. *Experimental one-way quantum computing.* *Nature* **434**, 169 (2005). [p. 40]
- [115] Mazoyer S., Hugonin J. P. & Lalanne P. *Disorder-Induced Multiple Scattering in Photonic-Crystal Waveguides.* *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063903 (2009). [p. 40]

- [116] García P. D., Javadi A., Thyrestrup H. & Lodahl P. *Quantifying the intrinsic amount of fabrication disorder in photonic-crystal waveguides from optical far-field intensity measurements.* *Appl. Phys. Lett.* **102**, 031101 (2013). [p. 40]
- [117] Lund-Hansen T., Stobbe S., Julsgaard B., Thyrestrup H., Süner T., Kamp M., Forchel A. & Lodahl P. *Experimental Realization of Highly Efficient Broadband Coupling of Single Quantum Dots to a Photonic Crystal Waveguide.* *Phys. Rev. Lett.* **101**, 113903 (2008). [p. 40]
- [118] Chu D. Y. & Ho S.-T. *Spontaneous emission from excitons in cylindrical dielectric waveguides and the spontaneous-emission factor of microcavity ring lasers.* *J. Opt. Soc. Am. B* **10**, 381 (1993). [p. 40]
- [119] Gisin N., Ribordy G., Tittel W. & Zbinden H. *Quantum cryptography.* *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145–195 (2002). [p. 41]
- [120] Cadeddu D., Teissier J., Braakman F. R., Gregersen N., Stepanov P., Gérard J.-M., Claudon J., Warburton R. J., Poggio M. & Munsch M. *A fiber-coupled quantum-dot on a photonic tip.* *Appl. Phys. Lett.* **108**, 011112 (2016). [pp. 41, 79]
- [121] Yariv A. & Yeh P. *Photonics : Optical Electronics in Modern Communications.* In *Photonics : Optical Electronics in Modern Communications* (Oxford University Press, Oxford, New York, 2006), sixth edition edn. [pp. 46, 47]
- [122] Claudon J. *Antennes Optiques à Base de Fils Photoniques : Concepts Fondamentaux et Applications à l'optique Quantique.* *Ph.D. thesis Université Joseph Fourier - Grenoble 1* (2014). [pp. 53, 68]
- [123] Yablonovitch E., Gmitter T. J. & Bhat R. *Inhibited and Enhanced Spontaneous Emission from Optically Thin AlGaAs/GaAs Double Heterostructures.* *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2546 (1988). [p. 55]
- [124] Maslov A. V., Bakunov M. I. & Ning C. Z. *Distribution of optical emission between guided modes and free space in a semiconductor nanowire.* *J. Appl. Phys.* **99**, 024314 (2006). [p. 55]
- [125] Ho S. T., McCall S. L. & Slusher R. E. *Spontaneous emission from excitons in thin dielectric layers.* *Opt. Lett.* **18**, 909 (1993). [p. 55]
- [126] Noda S., Fujita M. & Asano T. *Spontaneous-emission control by photonic crystals and nanocavities.* *Nature Phot.* **1**, 449 (2007). [p. 57]
- [127] Wang Q., Stobbe S. & Lodahl P. *Mapping the Local Density of Optical States of a Photonic Crystal with Single Quantum Dots.* *Phys. Rev. Lett.* **107**, 167404 (2011). [p. 57]
- [128] Malik N. S. *Les Fils Photoniques : Une Géométrie Innovante Pour La Réalisation de Sources de Lumière Quantique Brillantes.* *Thesis Grenoble* (2011). [p. 59]
- [129] Maslov A. V. & Ning C. Z. *Far-field emission of a semiconductor nanowire laser.* *Opt. Lett.* **29**, 572 (2004). [p. 60]
- [130] Almeida V. R., Panepucci R. R. & Lipson M. *Nanotaper for compact mode conversion.* *Opt. Lett.* **28**, 1302 (2003). [p. 60]
- [131] Chen L. & Towe E. *Nanowire lasers with distributed-Bragg-reflector mirrors.* *Appl. Phys. Lett.* **89**, 053125 (2006). [p. 63]

- [132] Lerner M., Gregersen N., Dunzer F., Reitzenstein S., Höfling S., Mørk J., Worschech L., Kamp M. & Forchel A. *Bloch-Wave Engineering of Quantum Dot Micropillars for Cavity Quantum Electrodynamics Experiments*. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057402 (2012). [p. 63]
- [133] Thelander C., Agarwal P., Brongersma S., Eymery J., Feiner L. F., Forchel A., Scheffler M., Riess W., Ohlsson B. J., Gösele U. & Samuelson L. *Nanowire-based one-dimensional electronics*. *Materials Today* **9**, 28 (2006). [p. 65]
- [134] Yan R., Gargas D. & Yang P. *Nanowire photonics*. *Nature Phot.* **3**, 569 (2009). [p. 65]
- [135] Gregersen N., Nielsen T. R., Mørk J., Claudon J. & Gérard J.-M. *Designs for high-efficiency electrically pumped photonic nanowire single-photon sources*. *Opt. Express* **18**, 21204 (2010). [p. 65]
- [136] Picard Y. N., Adams D. P., Spahn O. B., Yalisove S. M., Dagel D. J. & Sobczak J. *Low Stress, High Reflectivity Thin Films for MEMS Mirrors*. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **729** (2002). [p. 67]
- [137] Kim J.-H., Lim D. H. & Yang G. M. *Selective etching of AlGaAs/GaAs structures using the solutions of citric acid/H₂O₂ and de-ionized H₂O/buffered oxide etch*. *J. of Vacuum Science & Technology B* **16**, 558 (1998). [p. 67]
- [138] Yablonovitch E., Gmitter T., Harbison J. P. & Bhat R. *Extreme selectivity in the lift-off of epitaxial GaAs films*. *Appl. Phys. Lett.* **51**, 2222 (1987). [p. 67]
- [139] Wu X., Coldren L. & MERZ J. *Selective etching characteristics of HF for Al_xGa_{1-x}As/GaAs*. *Electronics Letters* **21**, 558 (1985). [p. 67]
- [140] de Almeida F. R., Yamamoto R. K. & Maciel H. S. *Reactive ion etching of PECVD silicon nitride in SF₆ plasma*. *Journal of Nuclear Materials* **200**, 371 (1993). [p. 68]
- [141] Cook E. & Siegel B. *Reactions of SF₆ with exploding metals*. *Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry* **29**, 2739 (1967). [p. 68]
- [142] Stern M. B. & Liao P. F. *Reactive ion etching of GaAs and InP using SiCl₄*. *J. of Vacuum Science & Technology B* **1**, 1053 (1983). [p. 68]
- [143] Varoutsis S., Laurent S., Sagnes I., Lemaître A., Ferlazzo L., Mériadec C., Patriarche G., Robert-Philip I. & Abram I. *Reactive-ion etching of high-Q and submicron-diameter GaAs/AlAs micropillar cavities*. *J. of Vacuum Science & Technology B* **23**, 2499 (2005). [p. 68]
- [144] de Assis P.-L., Yeo I., Gloppe A., Nguyen H. A., Tumanov D., Dupont-Ferrier E., Malik N. S., Dupuy E., Claudon J., Gérard J.-M., Auffèves A., Arcizet O., Richard M. & Poizat J.-P. *Strain-Gradient Position Mapping of Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **118**, 117401 (2017). [pp. 73, 79, 87, 94, 131]
- [145] Rueda-Fonseca P., Robin E., Bellet-Amalric E., Lopez-Haro M., Den Hertog M., Genuist Y., André R., Artioli A., Tatarenko S., Ferrand D. & Cibert J. *Quantitative Reconstructions of 3D Chemical Nanostructures in Nanowires*. *Nano Lett.* **16**, 1637 (2016). [pp. 77, 79]
- [146] Smith D. J. *Chapter 1 : Characterization of Nanomaterials Using Transmission Electron Microscopy*. In *Nanocharacterisation*, 24 (Royal Society of Chemistry, 2015), second edn. [p. 78]

- [147] Heinrich J., Huggenberger A., Heindel T., Reitzenstein S., Höfling S., Worschech L. & Forchel A. *Single photon emission from positioned GaAs/AlGaAs photonic nanowires*. *Appl. Phys. Lett.* **96**, 211117 (2010). [p. 78]
- [148] Heiss M., Fontana Y., Gustafsson A., Wüst G., Magen C., O'Regan D. D., Luo J. W., Ketterer B., Conesa-Boj S., Kuhlmann A. V., Houel J., Russo-Averchi E., Morante J. R., Cantoni M., Marzari N., Arbiol J., Zunger A., Warburton R. J. & Fontcuberta i Morral A. *Self-assembled quantum dots in a nanowire system for quantum photonics*. *Nature Materials* **12**, 439 (2013). [pp. 78, 87]
- [149] Haffouz S., Zeuner K. D., Dalacu D., Poole P. J., Lapointe J., Poitras D., Mnaymneh K., Wu X., Couillard M., Korkusinski M., Schöll E., Jöns K. D., Zwiller V. & Williams R. L. *Bright Single InAsP Quantum Dots at Telecom Wavelengths in Position-Controlled InP Nanowires : The Role of the Photonic Waveguide*. *Nano Lett.* **18**, 3047 (2018). [pp. 78, 79]
- [150] Bulgarini G., Dalacu D., Poole P. J., Lapointe J., Reimer M. E. & Zwiller V. *Far field emission profile of pure wurtzite InP nanowires*. *Appl. Phys. Lett.* **105**, 191113 (2014). [pp. 79, 82]
- [151] Chang D. E., Sørensen A. S., Demler E. A. & Lukin M. D. *A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons*. *Nature Physics* **3**, 807 (2007). [p. 79]
- [152] Shen J.-T. & Fan S. *Strongly Correlated Two-Photon Transport in a One-Dimensional Waveguide Coupled to a Two-Level System*. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 153003 (2007). [p. 79]
- [153] Kolchin P., Oulton R. F. & Zhang X. *Nonlinear Quantum Optics in a Waveguide : Distinct Single Photons Strongly Interacting at the Single Atom Level*. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 113601 (2011). [p. 79]
- [154] Zheng H., Gauthier D. J. & Baranger H. U. *Waveguide-QED-Based Photonic Quantum Computation*. *Phys. Rev. Lett.* **111**, 090502 (2013). [p. 79]
- [155] Javadi A., Söllner I., Arcari M., Hansen S. L., Midolo L., Mahmoodian S., Kiršanskė G., Pregnolato T., Lee E. H., Song J. D., Stobbe S. & Lodahl P. *Single-photon non-linear optics with a quantum dot in a waveguide*. *Nature Communications* **6**, 8655 (2015). [p. 79]
- [156] Bulgarini G., Reimer M. E., Zehender T., Hocevar M., Bakkers E. P. A. M., Kouwenhoven L. P. & Zwiller V. *Spontaneous emission control of single quantum dots in bottom-up nanowire waveguides*. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 121106 (2012). [p. 79]
- [157] Grzela G., Paniagua-Domínguez R., Barten T., Fontana Y., Sánchez-Gil J. A. & Gómez Rivas J. *Nanowire Antenna Emission*. *Nano Lett.* **12**, 5481 (2012). [p. 82]
- [158] Jeannin M., Artioli A., Rueda-Fonseca P., Bellet-Amalric E., Kheng K., André R., Tatarenko S., Cibert J., Ferrand D. & Nogues G. *Light-hole exciton in a nanowire quantum dot*. *Phys. Rev. B* **95**, 035305 (2017). [p. 82]
- [159] Häyrynen T., de Lasson J. R. & Gregersen N. *Open-geometry Fourier modal method : Modeling nanophotonic structures in infinite domains*. *J. Opt. Soc. Am. A* **33**, 1298 (2016). [p. 83]
- [160] Balanis C. A. *Advanced Engineering Electromagnetics*. In *Advanced Engineering Electromagnetics*, vol. Vol. 1, Chap. 6 (1989), wiley edn. [p. 83]

- [161] Munsch M., Claudon J., Bleuse J., Malik N. S., Dupuy E., Gérard J.-M., Chen Y., Gregersen N. & Mørk J. *Linearly Polarized, Single-Mode Spontaneous Emission in a Photonic Nanowire*. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 077405 (2012). [pp. 87, 89, 98, 101, 128, 132, 133]
- [162] Østerkryger A. D. *Engineering of Nanophotonic Structures for Quantum Information Applications*. Ph.D. thesis DTU Fotonik Department of Photonics Engineering Technical University of Denmark, Denmark (2018). [p. 87]
- [163] Snitzer E. *Cylindrical Dielectric Waveguide Modes*. *J. Opt. Soc. Am.* **51**, 491 (1961). [p. 88]
- [164] Tsitsishvili E. & Kalt H. *Exciton spin relaxation in strongly confining semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B* **82**, 195315 (2010). [pp. 97, 128, 132]
- [165] Johansen J., Julsgaard B., Stobbe S., Hvam J. M. & Lodahl P. *Probing long-lived dark excitons in self-assembled quantum dots*. *Phys. Rev. B* **81**, 081304 (2010). [pp. 97, 128, 132]
- [166] Tsitsishvili E., v. Baltz R. & Kalt H. *Temperature dependence of polarization relaxation in semiconductor quantum dots*. *Phys. Rev. B* **66**, 161405 (2002). [p. 97]
- [167] Smith J. M., Dalgarno P. A., Warburton R. J., Govorov A. O., Karrai K., Gerardot B. D. & Petroff P. M. *Voltage Control of the Spin Dynamics of an Exciton in a Semiconductor Quantum Dot*. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 197402 (2005). [pp. 98, 128]
- [168] Kurtze H., Yakovlev D. R., Reuter D., Wieck A. D. & Bayer M. *Hyperfine interaction mediated exciton spin relaxation in (In,Ga)As quantum dots*. *Phys. Rev. B* **85**, 195303 (2012). [p. 98]
- [169] Labeau O., Tamarat P. & Lounis B. *Temperature Dependence of the Luminescence Lifetime of Single CdSeZnS Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 257404 (2003). [p. 98]
- [170] Favero I., Cassabois G., Voisin C., Delalande C., Roussignol P., Ferreira R., Couteau C., Poizat J. P. & Gérard J. M. *Fast exciton spin relaxation in single quantum dots*. *Phys. Rev. B* **71**, 233304 (2005). [p. 98]
- [171] Paillard M., Marie X., Renucci P., Amand T., Jbeli A. & Gérard J. M. *Spin Relaxation Quenching in Semiconductor Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1634 (2001). [p. 98]
- [172] Sénès M., Urbaszek B., Marie X., Amand T., Tribollet J., Bernardot F., Testelin C., Chamarro M. & Gérard J.-M. *Exciton spin manipulation in InAs/GaAs quantum dots : Exchange interaction and magnetic field effects*. *Phys. Rev. B* **71**, 115334 (2005). [p. 98]
- [173] Lenihan A. S., Gurudev Dutt M. V., Steel D. G., Ghosh S. & Bhattacharya P. K. *Raman Coherence Beats from Entangled Polarization Eigenstates in InAs Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 223601 (2002). [p. 98]
- [174] Langbein W., Borri P., Woggon U., Stavarache V., Reuter D. & Wieck A. D. *Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots*. *Phys. Rev. B* **70**, 033301 (2004). [p. 98]
- [175] Stievater T. H., Li X., Cubel T., Steel D. G., Gammon D., Katzer D. S. & Park D. *Measurement of relaxation between polarization eigenstates in single quantum dots*. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4251–4253 (2002). [p. 98]
- [176] Wang Q., Stobbe S., Thyrrerstrup H., Hofmann H., Kamp M., Schlereth T. W., Höfling S. & Lodahl P. *Highly anisotropic decay rates of single quantum dots in photonic crystal membranes*. *Opt. Lett.* **35**, 2768 (2010). [p. 98]

-
- [177] Cortez S., Krebs O., Voisin P. & Gérard J. M. *Polarization of the interband optical dipole in InAs/GaAs self-organized quantum dots*. *Phys. Rev. B* **63**, 233306 (2001). [p. 100]
- [178] Favero I., Cassabois G., Jankovic A., Ferreira R., Darson D., Voisin C., Delalande C., Roussignol P., Badolato A., Petroff P. M. & Gérard J. M. *Giant optical anisotropy in a single InAs quantum dot in a very dilute quantum-dot ensemble*. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 041904 (2005). [pp. 100, 106]
- [179] Lafuente-Sampietro A., Utsumi H., Sunaga M., Makita K., Boukari H., Kuroda S. & Besombes L. *Dynamics of a Cr spin in a semiconductor quantum dot : Hole-Cr flip-flops and spin-phonon coupling*. *Phys. Rev. B* **97**, 155301 (2018). [pp. 128, 133]
- [180] Tiwari V., Makita K., Arino M., Morita M., Kuroda S., Boukari H. & Besombes L. *Influence of nonequilibrium phonons on the spin dynamics of a single Cr atom*. *Phys. Rev. B* **101**, 035305 (2020). [pp. 128, 133]
- [181] Nguyen H. S., Sallen G., Voisin C., Roussignol P., Diederichs C. & Cassabois G. *Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots*. *Phys. Rev. Lett.* **108**, 057401 (2012). [p. 128]
- [182] Moreau E., Robert I., Gérard J. M., Abram I., Manin L. & Thierry-Mieg V. *Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities*. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865 (2001). [pp. 128, 133]
- [183] Strauf S., Stoltz N. G., Rakher M. T., Coldren L. A., Petroff P. M. & Bouwmeester D. *High-frequency single-photon source with polarization control*. *Nature Photonics* **1**, 704 (2007). [pp. 128, 133]
- [184] Stepanov P., Delga A., Zang X., Bleuse J., Dupuy E., Peinke E., Lalanne P., Gérard J.-M. & Claudon J. *Quantum dot spontaneous emission control in a ridge waveguide*. *Appl. Phys. Lett.* **106**, 041112 (2015). [pp. 128, 133]

RÉSUMÉ

Une antenne à fil photonique permet de façonner l'émission d'une boîte quantique (BQ) en un faisceau directif, qui peut être collecté efficacement par des optiques en espace libre. Ces structures photoniques trouvent des applications dans l'émission d'états non classiques de la lumière (photons uniques, paires de photons enchevêtrés) ou dans la génération de non-linéarités géantes, à l'échelle du photon unique. Cette thèse contribue à une meilleure compréhension des propriétés optiques des BQs InAs intégrées dans des antennes à fil photonique à travers deux résultats principaux. Nous démontrons tout d'abord une technique tout optique - et donc non destructive - pour localiser précisément une BQ dans une section de l'antenne. La position de l'émetteur est importante car elle conditionne la force de l'interaction lumière-matière au sein de l'antenne, ainsi que le couplage de la BQ à certains canaux de décohérence spectrale. La technique proposée exploite l'émission de la BQ dans deux modes guidés qui présentent des profils spatiaux différents et s'appuie sur une cartographie du champ lointain résolu en angle. La seconde étude porte sur les mécanismes de spin-flip qui couplent les états excitoniques d'une BQ neutre. Ces spin-flips constituent une source de décohérence. Pour les révéler, nous intégrons la BQ dans une structure photonique anisotrope (ici un fil photonique avec une section elliptique). Des mesures de polarisation et de déclin de la photoluminescence résolu en temps donnent alors accès aux taux de spin-flips. Nous étudions en particulier l'influence de la température et de la puissance d'excitation non-résonante.

ABSTRACT

A photonic wire antenna shapes the emission of a quantum dot (QD) into a directional beam, which can be efficiently collected by free-space optics. These photonic structures find applications in the emission of non-classical states of light (single photons, entangled pairs of photons) or in the generation of giant non-linearities, at the level of a single photon. This thesis contributes to a better understanding of the optical properties of InAs QDs integrated in photonic wire antennas through two main results. We first demonstrate an all-optical - and therefore non-destructive - technique for precisely locating a QD in a section of the antenna. The position of the emitter is important because it conditions the strength of the light-matter interaction within the antenna, as well as the coupling of the QD to certain spectral decoherence channels. The proposed technique exploits the emission of the QD in two guided modes which present different spatial profiles and is based on a measurement of the angle-resolved far-field map. The second study focuses on spin-flip mechanisms that couple the exciton states of a neutral QD. These spin-flips are a source of decoherence. To reveal them, we integrate the QD into an anisotropic photonic structure (here a photonic wire with an elliptical cross section). Polarization measurements combined with time-resolved measurements of the photoluminescence decay then allow determining the spin-flip rates. We present a study of the influence of the temperature and of the non-resonant excitation power.