



HAL
open science

Contrôle de l'émission dans la bande télécom O de nanotubes de carbone individuels couplés à une micro-cavité fibrée

Théo Habrant-Claude

► **To cite this version:**

Théo Habrant-Claude. Contrôle de l'émission dans la bande télécom O de nanotubes de carbone individuels couplés à une micro-cavité fibrée. Physique Quantique [quant-ph]. Université Paris Cité; Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure, 2019. Français. NNT: . tel-03876836

HAL Id: tel-03876836

<https://theses.hal.science/tel-03876836v1>

Submitted on 28 Nov 2022

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

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



Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License

THÈSE de DOCTORAT
de l'Université de Paris

École Doctorale 564 : Physique en Île de France

Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure - Équipe de Nano-Optique

Contrôle de l'émission dans la bande télécom O
de nanotubes de carbone individuels
couplés à une micro-cavité fibrée

par **Théo Claude**

THÈSE DE DOCTORAT DE PHYSIQUE
DIRIGÉE PAR CHRISTOPHE VOISIN

Soutenue publiquement à Paris, le 18 novembre 2019
devant le jury composé de :

Isabelle PHILIP	Directrice de Recherche (HDR)	Rapporteuse	CNRS, L2C
Richard MARTEL	Professeur (HDR)	Rapporteur	Univ. de Montréal
Laetitia MARTY	Chargée de Recherche	Examinatrice	CNRS, NEEL
Aloyse DEGIRON	Chargé de Recherche (HDR)	Examinateur	CNRS, MPQ
Jean HARE	Professeur (HDR)	Invité	Sorbonne Univ.
Yannick CHASSAGNEUX	Chargé de Recherche	Invité	CNRS, LPENS
Christophe VOISIN	Professeur (HDR)	Dir. de thèse	Univ. de Paris



Except otherwise noted, this work is licensed under
<https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>

Résumé : L'objectif de cette thèse est de réaliser une source de photons uniques accordable dans la bande télécom O en utilisant comme émetteurs des nanotubes de carbone. Ces nano-structures auto-assemblées sont faciles à produire, contactables électriquement et utilisables à température ambiante. De plus, l'extraction de leur photoluminescence n'est pas limitée par des réflexions internes. Leur émission est néanmoins extrêmement sensible à leur environnement et leur rendement quantique est assez faible.

Pour concevoir une source stable en longueur d'onde et en intensité, il est crucial de comprendre l'interaction des nanotubes avec l'environnement. Dans ce but, la photoluminescence à basse température de nanotubes de carbone individuels a été étudiée par imagerie hyper-spectrale super-résolue. Cette expérience met en relief la localisation des excitons le long du nanotube dans des puits de potentiels induits par les inhomogénéités de permittivité diélectrique de l'environnement. En outre, en sondant ces puits par une excitation quasi-résonante, une disparition de la transition propre à l'exciton libre et une absorption privilégiée via des niveaux excités localisés sont observées.

Pour obtenir une source de photons uniques performante, les émetteurs sont couplés à une cavité optique micro-métrique pour améliorer, grâce à l'effet Purcell, la directionnalité de l'émission et son efficacité quantique. Une géométrie de cavité Fabry-Pérot ouverte a été choisie pour bénéficier d'une flexibilité maximale concernant l'accord spatial et spectral et pour pouvoir analyser les effets le plus finement possible grâce à une comparaison de l'émission en espace libre et en cavité pour le même nano-émetteur. Le facteur de Purcell étant proportionnel à l'inverse du volume de mode, la cavité est miniaturisée en usinant l'un de ses deux miroirs à l'échelle micrométrique sur l'extrémité d'une fibre optique. Cette configuration permet aussi de collecter directement l'émission via le mode guidé dans la fibre. Pour que les vibrations mécaniques brouillent le moins possible les mesures, un soin particulier a été apporté à la stabilisation de cette cavité. Ainsi, le taux d'émission des nanotubes a pu être augmenté d'un facteur 14 pour une constante de couplage d'environ 30 μeV . La grande plage d'accordabilité de la cavité a permis de vérifier l'évolution du facteur de Purcell et du couplage en fonction du volume de mode et d'explorer un phénomène original d'électrodynamique quantique en cavité : le couplage tripartite exciton/cavité/phonons.

Ce dispositif expérimental pourrait être aussi appliqué à des mesures d'absorption sur les nanotubes de carbone ou à l'étude d'autres types d'émetteurs tels que les boîtes quantiques, les défauts dans les matériaux bidimensionnels, les centres colorés ou encore les molécules uniques.

Mots clés : Électrodynamique quantique en cavité, Nanotube de carbone monoparoi, Micro-cavité fibrée, Source de photons uniques, Bandes télécoms, Excitons, Phonons.

Abstract : The goal of this thesis is to build a single photon source tunable in telecom O-band based on carbon nanotube as emitters. These self-assembled nanostructures are easy to produce, usable at room temperature and, they can be electrically stimulated. In addition, their photoluminescence extraction is not limited by internal reflections. However, their emission is very sensitive to their environment and their quantum yield is quite low.

It is crucial to understand the interaction between nanotubes and their surroundings to design a stable source in terms of wavelength and intensity. To this end, the low temperature photoluminescence of single carbon nanotubes was studied by super-resolved hyper-spectral imaging. This experiment highlights the localization of excitons along the nanotube in potential wells induced by tiny variations of the local dielectric permittivity. In addition, these wells have been probed by quasi-resonant excitation which shows a quenching of the free 1D exciton and preferential absorption via localized excited levels.

In order to get a competitive single photon source, the emitters are coupled to an optical micro-cavity to improve, thanks to Purcell effect, the directionality of the sources and their quantum yield. An open Fabry-Pérot cavity has been chosen to tune the cavity spatially and spectrally with the emitter and to study their coupling with high accuracy by comparing the emission in free space with the one in cavity. Since the Purcell factor is proportional to the inverse the effective mode volume, the cavity size is shrunk by machining one of its two mirror on the apex of an optical fiber at the micrometric scale. In this configuration, the emission can be collected directly thanks to the guided fiber mode. In order for the mechanical vibrations to interfere as little as possible with the measurements, particular care has been taken in stabilizing the device. Thus, the emission rates of carbon nanotubes has been increased by a factor of 14 for a coupling constant of about $30 \mu\text{eV}$. The large tunability range has let us verify the Purcell factor and coupling behaviors as a function of the mode volume. Moreover, it has allowed for exploring an original phenomenon of cavity quantum electrodynamics: the tripartite coupling exciton/cavity/phonons.

This experimental device could also be used for absorption measurements on carbon nanotubes or for studying other types of emitters such as quantum dots, defects in two-dimensional materials, colored centers or single molecules.

Key words: Cavity quantum electrodynamic, Single wall carbon nanotube, Fiber-based microcavity, Single photon source, Telecom band, Excitons, Phonons.

Remerciements

Je remercie Isabelle Philip et Richard Martel d’avoir accepté d’être les rapporteurs de ce manuscrit et d’en avoir exploré même les annexes les plus touffues. Je suis également très reconnaissant à Laetitia Marty, Aloyse Degiron et Jean Hare d’avoir fait partie du jury. Merci à tous pour vos questions judicieuses lors de la soutenance et vos remarques qui m’ont permis d’améliorer la lisibilité de mon manuscrit.

Je remercie Jean-Marc Berroir, directeur du département de physique, Jérôme Tignon, ancien directeur du Laboratoire Pierre Aigrain, pour m’avoir accueilli au sein de cet environnement de recherche très dynamique et pour leur conseils avisés concernant la poursuite de ma carrière.

J’ai sincèrement apprécié être encadré par Christophe Voisin et Yannick Chassagneux durant ces années de doctorat. Je vous remercie vivement d’avoir construit un sujet de recherche aussi ambitieux, varié et motivant ! Vous avez toujours su vous rendre disponibles et garder à l’esprit la réussite de vos doctorants, ce qui est vraiment agréable. Christophe, j’admire particulièrement ta capacité de synthèse, ta prise de recul et la facilité avec laquelle tu sais t’adapter à ton public. Yannick, je suis toujours impressionné par ton efficacité¹ sur le terrain allant du serrage (définitif) des pieds d’optique aux simulations complexes les plus diverses.

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont été possibles grâce à quelques collaborations réactives et pleines d’initiatives auxquelles je dois beaucoup. Je remercie Jakob Reichel et son groupe *Atom Chips* pour nous avoir mis à disposition leur station d’usinage de fibre optique. Merci à Benjamin Besga, Sébastien Garcia, Konstantin Ott et Torben Pöplau qui ont simplifié ce dispositif pour le rendre utilisable par une personne extérieure. Je remercie Jana Zaumseil et Arko Graf à l’université de Heidelberg pour leurs CNT longs, Stephen Doorn et Xiaowei He au laboratoire de Los Alamos pour leurs CNT dopés et, Qihua Xiong et Pei Jiajie à l’université de Nanyang pour m’avoir confié l’un de leurs délicats échantillons de *black phosphorus*.

Merci chaleureusement aux membres de l’équipe Nano-optique qui m’ont apporté énormément d’un point de vue tant scientifique que personnel. Merci Philippe pour m’avoir accueilli dans ce groupe qui n’est plus si cohérent et non linéaire. Dommage que tu sois parti à Tunis, les réunions ont perdu en piquant sans ton humour caustique. Merci Emmanuel pour tes anecdotes et problèmes de physiques rafraîchissants et tes conseils pertinents aussi bien en Fantasy qu’en phase non minimale. Merci plus généralement aux membres permanents du groupe (et de son antenne au LAC) Carole, Jean-Sébastien, Gabriel, Christos et Claude pour toutes les discussions autour d’un café. Merci aux jeunes docteurs aux côtés desquels j’ai travaillé : Omblin, Simon, Adrien, Tom, Louis, Paul, Lucile et Christophe. Adrien, j’espère avoir fait honneur à ta manip’ et merci pour cette phrase qui m’a servi dans les moments les plus

1. $\beta = \frac{g^2 \kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}})}{g^2 (\kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}}) + \gamma \tilde{S}_{\text{abs}}(\omega_{\text{cav}})) + \gamma \kappa}$.

déliçats : « L'absence de signal, c'est déjà une information. ». Tom, je te souhaite un avenir rempli de melons, de loups et de géopolitique. Louis, avoir ton bureau à moins de deux mètres du mien n'était pas ce qu'il y avait de plus productif mais, c'était une expérience très enrichissante. À bientôt j'espère, pour des spaghetti au guanciale. Lucile, ton rayonnement féministe assaini ton entourage et je suis content d'en avoir bénéficié. Je te souhaite de trouver rapidement une place à la mesure de ta vocation d'enseignante. Christophe, j'aurais bien aimé bosser un an de plus avec toi... à quelques détails près tu aurais été le binôme parfait. Merci aussi à ceux qui vont encore ramer quelques temps : Romaric, Hadrien, Raouf, Antoine, Clément et Maxime. Romaric, je suis toujours épaté par l'énergie que tu investis constamment pour améliorer ta productivité. Tu as beaucoup apporté à l'équipe ne serait-ce qu'en terme d'ergonomie et on ne te remerciera jamais assez pour la machine à café ! Je te souhaite le meilleur dans tes *projets*. Hadrien, mangeur de cookies et artiste imprimeur 3D, bon courage dans les terahertz et n'oublie pas qu'un grand pouvoir en NFC implique de grandes responsabilités. Raouf, j'ai hâte d'assister à ta soutenance en mondovision et bonne rédaction au pays du durian. Antoine, au fur et à mesure de la mise en place de mon dispo, je me suis dit que je ne serais pas ravi de le laisser entre les mains de n'importe qui. Aujourd'hui, je suis rassuré, tu es solide. 頑張って. Merci aussi à Gabriel Chatelain, mon premier stagiaire, ta motivation faisait plaisir à voir et c'était très sympa de travailler avec toi.

Enfin, si ce laboratoire tourne aussi bien, c'est en grande partie grâce au personnel administratif et technique qui résout la plupart de nos problèmes du quotidien. Je voudrais remercier en particulier Anne Matignon, Olga Hodges et Christine Chambon du service financier, Didier Courtiade, Catherine Gripe, Célia Ruschinzik et Théo Charpentier du service logistique et maintenance, Cyrille Le Gallo du magasin matériaux, Claude Dodray, Yann Colin et Frédéric Desprez pour l'informatique, Pascal Morfin, Anaëlle Pascal, Nabil Garroum et Arnaud Leclercq du bureau d'étude, Jean-Michel Isac, Mathieu Sardin, Jules Silembo, Allan Hourdry et Saindou Ismael de l'atelier mécanique, Anne Denis, Philippe Pace et David Darson pour l'électronique, Olivier Andrieu et Florent Perrin pour la cryogénie (et la clim !) et Aurélie Pierret, José Palomo et Michaël Rosticher en salle blanche.

Merci de tout cœur à mes amis, à ma famille et, surtout, à mes parents qui ont été d'un soutien sans faille.

Merci à Héloïse qui a bien voulu de moi comme mari, entre les chapitres 4 et 5 de ce manuscrit.

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	2
1 Propriétés optiques des nanotubes de carbone	7
1.1 Propriétés des nanotubes de carbone	8
1.1.1 Structure de bande	9
1.1.2 Transitions optiques	17
1.2 Préparation et caractérisation des échantillons	23
1.2.1 Production de nanotubes de carbone individuels	24
1.2.2 Photoluminescence	29
1.3 Émission de photons uniques	38
1.3.1 Expérience de Hanbury Brown et Twiss	39
1.3.2 Émetteurs dans les bandes télécoms	41
2 Localisation non intentionnelle des excitons	47
2.1 Localisation des excitons	47
2.1.1 Piégeage des excitons	49
2.1.2 Imagerie hyper-spectrale super-résolue	51
2.2 Photoluminescence résolue en excitation	54
2.2.1 Constatations expérimentales	54
2.2.2 Simulation du mécanisme de piégeage	56
2.2.3 Parallèle avec les nanotubes de carbone dopés	59
3 Émetteur unique couplé à une cavité optique	62
3.1 Couplage émetteur/cavité	63
3.1.1 Contrôler l'émission d'un dipôle	64
3.1.2 Atome artificiel	72
3.1.3 État de l'art expérimental	79
3.2 Micro-cavité fibrée	97
3.2.1 Cavité Fabry-Pérot	98
3.2.2 Volume de mode	105
3.2.3 Finesse réelle	122
4 Stabilisation de la micro-cavité	132
4.1 Influence des vibrations	133
4.1.1 Description du dispositif	133
4.1.2 Estimation des vibrations	139
4.2 Stabilisation passive	142

TABLE DES MATIÈRES

4.2.1	Atténuation des vibrations	142
4.2.2	Bilan à températures ambiante et cryogénique	146
4.3	Stabilisation active	149
4.3.1	Boucle de rétroaction	149
4.3.2	Fonction de transfert	152
4.3.3	Mise en œuvre expérimentale	162
5	Nanotube de carbone en cavité	172
5.1	Passer de micro-PL à cavité	173
5.1.1	Principe	173
5.1.2	Mise en place	176
5.2	Effets de couplage	179
5.2.1	Balayage de la longueur de cavité	180
5.2.2	Effet sur l'intégralité du spectre	189
	Conclusion et perspectives	202
	Annexe A Caractérisation des nanotubes de carbone	207
A.1	Caractérisation préliminaire	207
A.2	Miroir contrôlé et dispositif $4f$	210
A.3	Modélisation du spectre de PL	210
	Annexe B Couplage émetteur/cavité	215
B.1	Analogie électrocinétique et couplage	215
B.2	Influence des phonons	217
	Annexe C Micro-cavité fibrée	222
C.1	Usinage du micro-miroir	223
C.2	Mesure de la finesse de la micro-cavité	226
C.3	Collections du mode de cavité	232
	Annexe D Stabilisation de la micro-cavité	237
D.1	Stabilisation passive	237
D.2	Stabilisation active	252
	Annexe E Procédure d'alignement	271
E.1	Alignement des faisceaux	272
E.2	Transmission de l'excitation arrière	273
E.3	Aberrations sphériques et chromatiques	275
	Bibliographie	277
	Index des acronymes	305
	Symboles récurrents	307

Introduction

L'utilisation de la lumière comme support de communication remonte à l'Antiquité. La prise de Troie aurait été annoncée au reste de la Grèce en allumant des feux le long de la côte. Près de 3000 ans plus tard, le télégraphe optique est inventé par Claude Chappe durant la Révolution française. Il s'agit du premier dispositif de télécommunication employé de façon systématique dans différents pays. Ce procédé de communication est rapidement supplanté, d'abord par le télégraphe électrique, puis par la propagation de signaux électriques dans des câbles coaxiaux ou de signaux hertziens via des antennes directives. Puis à la fin des années 70, en partie grâce aux travaux [1] de Charles Kao (prix Nobel de physique 2009), les premières liaisons par fibre optique sont installées. Les progrès réalisés sur la synthèse des fibres et les sources codant l'information en signaux lumineux permettent d'atteindre un débit et une qualité de transmission inaccessibles aux autres modes de communication. Avec la création d'Internet au début des années 90, les fibres optiques deviennent incontournables.

Les avancées en communication optique vont de pair avec l'étude de sources lumineuses et de détecteurs et, plus généralement, des interactions lumière/matière. La plupart des détecteurs optiques sont basés sur l'effet photoélectrique découvert par Antoine Becquerel et son fils en 1839. Cette émission d'électrons par un matériau soumis à l'action de la lumière est expliquée en 1905 par Albert Einstein [2]. Il a interprété ce phénomène comme une absorption de quanta de lumière appelés photons par la suite [3]. Cette constatation a donné naissance à un nouveau pan de la physique, la mécanique quantique. Cette théorie quantique implique des postulats difficiles à appréhender à notre échelle. Elle admet, entre autres, que réaliser une mesure sur un objet quantique perturbe les propriétés quantiques de cet objet. En outre, sa construction impose qu'un objet quantique inconnu ne peut pas être dupliqué. Stephen Wiesner propose en 1983 d'appliquer ces propriétés singulières en communication et, en particulier, à la cryptographie [4]. La sécurisation d'une communication repose sur la transmission d'une clé chiffrée entre deux interlocuteurs sans qu'elle soit divulguée à un tiers. Si cette clé est distribuée sur des objets quantiques, appelés qubits, la présence d'un espion sur la ligne peut être détectée. En effet, puisqu'il n'est pas possible de copier la clé, l'espion serait obligé de la modifier en réalisant une mesure. Les photons transmis à travers une fibre optique constituent donc un support de choix à une communication quantique [5, 6] qui profiterait du réseau de télécommunication classique.

Cependant, la confidentialité d'une communication quantique repose sur l'émission de photons uniques (source non classique de lumière). Si l'information est redondante dans le signal, rien n'empêcherait un espion d'en prélever une partie. Il est donc crucial d'utiliser une source émettant un photon à la fois, dite source de photons uniques (SPS²). Ce type de source ne peut pas être obtenu en atténuant un laser ou une ampoule à incandescence car les photons ont tendance à être émis simultanément.

2. Pour *Single Photon Source*.

La première SPS a été réalisée à partir d'atomes de sodium en 1977 [7] puis des sources plus abouties ont vu le jour à partir d'un phénomène d'émission de photons en cascade [8]. Toutefois le développement de SPS qui puissent répondre à des exigences industrielles (en termes d'intégrabilité, de longueur d'onde d'émission ou de température de fonctionnement) reste un défi majeur. Jusqu'à présent, un grand nombre de nano-émetteurs tels que les boîtes quantiques semi-conductrices, les centres colorés dans le diamant ou les molécules uniques [9] ont été considérés, mais aucun d'entre eux ne répond à toutes les exigences. Les inconvénients les plus courants sont la difficulté d'extraire les photons émis à cause des réflexions internes à la nano-structure, le décalage entre leur longueur d'onde et les bandes de transmission des fibres optiques (entre 1,3 μm et 1,55 μm), la complexité d'une excitation électrique et l'obligation de travailler à température cryogénique.

Depuis une dizaine d'années, des progrès expérimentaux, en particulier en science des matériaux, ont permis d'identifier les nanotubes de carbone (CNT³) à paroi unique comme des émetteurs prometteurs pour fabriquer une SPS. Ils se composent d'une couche d'atomes organisés sous forme tubulaire dans un réseau en nid d'abeille. La plupart de leurs propriétés physiques sont déterminées par leur diamètre et l'angle avec lequel s'enroule le réseau. Leur géométrie est quasiment unidimensionnelle : leur diamètre est nanométrique pour une longueur de l'ordre du micromètre. L'engouement pour ces nano-structures a commencé en 1991 avec la publication de Sumio Iijima [10]. Ils ont d'abord été étudiés pour leurs propriétés électriques et mécaniques [11, 12] avant que leur photoluminescence ne soit observée pour la première fois en 2002 [13]. Cette démonstration expérimentale tardive est due à leur tendance à s'agréger en faisceaux et à des transferts d'énergie vers des nanotubes métalliques non luminescents. En pratique, seulement deux tiers des nanotubes sont semi-conducteurs. Ainsi, pour obtenir un échantillon de propriétés homogènes (par exemple composé de nanotubes émettant dans les bandes télécoms), il suffit de séparer les nanotubes les uns des autres et de les trier par diamètre. Depuis peu, ces étapes de purification sont devenues très simples [14, 15] et peu coûteuses ce qui rend possible leur production à grande échelle. Ces nano-structures sont synthétisées nues ce qui leur confère une certaine souplesse dans leur utilisation : ils peuvent être enrobés [16, 17], déposés en matrice, contactés électriquement [18, 19] et leur photoluminescence peut être facilement collectée. Enfin, leur particularité la plus marquante dans ce contexte est d'émettre des photons uniques à température cryogénique [20] comme à température ambiante [21, 22]. Ces avantages notables sont contrebalancés par deux inconvénients majeurs : les nanotubes de carbone sont extrêmement sensibles à leur environnement et leur rendement quantique, c'est-à-dire leur probabilité d'émettre un photon à la demande, est assez faible.

L'émission des nanotubes de carbone provient de la recombinaison de paires électron-trou confinées, les excitons [23, 24]. Or, la fonction d'onde de ces quasi-particules déborde de la paroi des nanotubes. Ainsi, la moindre fluctuation de

3. Pour *Carbon NanoTube*.

permittivité diélectrique [25] ou de champ électrostatique [26] dans leur environnement local peut modifier l'énergie des photons émis. Cela crée un élargissement inhomogène et peut engendrer une diffusion spectrale plus ou moins significative. De plus, les spectres de photoluminescence s'éloignent drastiquement du profil attendu pour l'émission provenant de structures quasi-unidimensionnelles. Ce phénomène proviendrait d'un piégeage des excitons et de leurs interactions avec les vibrations du réseau cristallin [27, 28]. La localisation des excitons pourrait être causée par la proximité d'un défaut structurel ou par un puits de potentiel local créé par l'environnement [29]. Associée à un mécanisme d'annihilation rapide des paires d'excitons [30], elle serait à l'origine de l'émission de photons uniques des nanotubes de carbone [20]. L'adjonction de défauts induits chimiquement montre une amélioration de la stabilité d'émission (en longueur d'onde comme en intensité) et une augmentation du rendement radiatif [31, 32]. Ainsi la compréhension des mécanismes de localisation des excitons est un enjeu majeur pour maîtriser la qualité d'émission des nanotubes de carbone.

Un autre moyen d'augmenter l'efficacité d'émission des nanotubes de carbone est de les coupler à une cavité optique. En effet, la modification locale du champ électromagnétique peut exalter leur taux d'émission spontanée par effet Purcell [33]. Cette exaltation est d'autant plus forte que les largeurs spectrales de la cavité et de l'émetteur sont fines [34] et que le volume de la cavité est faible. Pour cette raison, les cavités employées dans ce contexte sont de tailles micrométriques. Or, pour bénéficier pleinement de l'effet Purcell, la cavité doit être accordée spatialement et spectralement avec le nanotube. Pour satisfaire ces conditions exigeantes, il est possible de tabler sur la chance en dispersant une grande quantité d'émetteurs sur un grand nombre de cavités intégrées et d'espérer trouver quelques cas présentant un couplage convenable [35]. Cependant, dans cette configuration, il n'y a aucun moyen de vérifier si l'accord spatial est optimal. De plus, il est impossible de choisir un émetteur précis puis de le coupler à une cavité. Ainsi, l'effet réel de la cavité sur l'émetteur ne peut pas être évalué sans équivoque. Pour acquérir plus de flexibilité et réaliser un couplage déterministe, il paraît judicieux d'employer une cavité Fabry-Pérot ouverte. Pour la miniaturiser, l'un des deux miroirs composant cette cavité est usiné à une échelle micrométrique sur l'extrémité d'une fibre optique [36]. Cette micro-cavité fibrée est adaptable aux CNT sur une très large plage de longueur d'onde [37] mais elle a le désavantage de vibrer. Ces fluctuations mécaniques ne changent pas l'effet de la cavité sur l'émetteur car elles sont lentes devant leurs temps caractéristiques de relaxation et de couplage. Par contre, elles sont en général rapides devant la durée de la mesure et brouillent les observations. Il faut donc veiller à stabiliser au mieux la cavité.

Analyser l'interaction d'un nanotube de carbone avec une cavité présente aussi un intérêt plus fondamental dans le cadre de l'électrodynamique quantique en cavité (CQED⁴). Les effets de couplage à une cavité ont été étudiés pour de nombreux types

4. Pour *Cavity Quantum Electrodynamics*.

d'émetteurs ponctuels ou bidimensionnel. En revanche, le cas d'une nano-structure présentant un confinement unidimensionnel a été rarement abordé expérimentalement. En outre, l'accordabilité en longueur d'onde de la cavité permet d'explorer un effet propre aux émetteurs à l'état solide : le maintien d'une émission intense même lorsque la cavité est désaccordée spectralement. Ce phénomène original de CQED provient d'un couplage tripartite : exciton, cavité, vibrations du réseau cristallin. [38, 39].

Des travaux antérieurs ont permis de réaliser une source de photons uniques accordable à partir d'un CNT couplé à une micro-cavité fibrée [40]. Cette thèse a pour but de poursuivre ce travail en perfectionnant ce dispositif selon quatre différents axes : adapter la source aux bandes télécoms, améliorer la qualité d'émission des CNT pour accroître l'effet Purcell, augmenter le couplage à la cavité en réduisant son volume de mode, et réduire les vibrations mécaniques du système pour faciliter l'interprétation des données.

Ce manuscrit est structuré de la façon suivante : le chapitre 1 est consacré aux propriétés optiques des nanotubes de carbone. Il détaille la géométrie de ces nano-structures à partir de celle du graphène et décrit les transitions optiques accessibles en mettant en relief les effets propres aux excitons. Les excitons étant fortement influencés par leur environnement, une meilleure compréhension de cette interaction serait un levier majeur pour améliorer la qualité d'émission des CNT (largeur d'émission, stabilité en intensité et en longueur d'onde, et émission de photons uniques). Dans ce but, les potentiels sites de piégeage des excitons ont été étudiés grâce à une technique d'imagerie hyper-spectrale super-résolue et une excitation quasi-résonante [41]. Ses conclusions sont en accord avec l'observation d'un dégroupement de photons dans l'émission des CNT, rappelée dans un état de l'art des SPS dans les bandes télécoms.

Le chapitre 3 explique l'effet Purcell dans le cadre de la matière condensée et décrit la micro-cavité fibrée utilisée. Il introduit le concept de déphasage pur qui élargit spectralement les émetteurs à l'état solide et sa prise en compte dans le cas du couplage à une cavité. Cela permet d'établir un bilan des SPS dans les bandes télécoms et de contextualiser notre prototype. Les micro-cavités fibrées fabriquées dans cette thèse sont issues d'une collaboration avec l'équipe *Atom chips* du laboratoire Kastler Brossel mais n'ont pas les mêmes contraintes que celles réalisées en physique atomique. Leur géométrie et leurs propriétés de transmission sont donc détaillées. Ce chapitre précise la démarche suivie lors de l'usinage des fibres afin d'accroître le couplage des CNT avec les micro-cavités.

Le chapitre 4 résume les techniques employées pour stabiliser la micro-cavité. Il justifie pourquoi le dispositif est particulièrement sujet aux vibrations et comment elles peuvent être quantifiées. Les vibrations ont pu être significativement réduites en solidarissant le support de l'échantillon à celui du micro-miroir sans perdre en flexibilité en profitant d'un mouvement de type « collé-glissé ». Pour s'opposer aux fluctuations de longueur de cavité, une rétroaction a aussi été mise en place. Pour ne pas perturber les émetteurs, le signal d'erreur a été construit sur les fluctuations de

transmission de leur excitation hors-résonances.

Enfin, le chapitre 5 décrit l'émission d'un CNT en cavité. La photoluminescence et le rendement peuvent être analysés et comparés à ceux en espace libre. Le fait de pouvoir étudier un même émetteur dans ces deux configurations est une originalité de notre dispositif. Elle est rendue possible grâce au maintien de la fibre usinée à travers une lentille percée utilisée pour collecter la photoluminescence en espace libre. Le facteur de Purcell est calculé grâce au rapport des flux de photons en espace libre et en cavité. Le taux de couplage est estimé en jouant sur l'accord spectral entre la cavité et l'émetteur. Leurs évolutions avec le volume de mode sont commentées.

1

PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES NANOTUBES DE CARBONE

Sommaire

1.1 Propriétés des nanotubes de carbone	8
1.1.1 Structure de bande	9
1.1.1.1 Structure spatiale	9
1.1.1.2 Densité d'états	14
1.1.2 Transitions optiques	17
1.1.2.1 Règles de sélection	17
1.1.2.2 Effets excitoniques	19
1.2 Préparation et caractérisation des échantillons	23
1.2.1 Production de nanotubes de carbone individuels	24
1.2.1.1 Synthèse	24
1.2.1.2 Dispersion, sélection et dopage	25
1.2.1.3 Dépôts	28
1.2.2 Photoluminescence	29
1.2.2.1 Dispositif de micro-photoluminescence	30
1.2.2.2 Spectre typique	32
1.2.2.3 Influence de l'environnement électrostatique	36
1.3 Émission de photons uniques	38
1.3.1 Expérience de Hanbury Brown et Twiss	39
1.3.2 Émetteurs dans les bandes télécoms	41

Ce chapitre décrit pourquoi les nanotubes de carbone sont d'excellents émetteurs pour réaliser des sources de photons uniques dans les bandes télécoms.

La partie 1.1 est consacrée aux propriétés de photoluminescence de ces nanotubes. Pour les comprendre, leur propriétés électroniques sont d'abord déduites à partir de celles du graphène. Puis les transitions optiques accessibles pour les nanotubes semi-conducteurs sont identifiées et leur comportement optique, dominé par celui de quasi-particules appelées excitons, est détaillé.

La partie 1.2 donne l'origine des échantillons utilisés dans cette thèse. Elle résume les protocoles de synthèse et de purification des nanotubes réalisées par des collaborateurs. En outre, elle détaille les méthodes de dépôt et de caractérisation des échantillons réalisés sur place. En particulier, les conditions favorisant la diminution de la diffusion spectrale de l'émetteur sont précisées et justifiées.

La partie 1.3 présente une propriété optique inattendue chez les nanotubes de carbone : l'émission de photons uniques. Cette caractéristique constituant le cœur de ce travail de thèse est expliquée et l'originalité des nanotubes de carbone, comparativement à d'autres types d'émetteurs dans les bandes télécoms, est commentée.

1.1 Propriétés des nanotubes de carbone

Dès 1889, un brevet concernant les ampoules à incandescence mentionne pour la première fois la formation de filaments de carbone lors de la décomposition du méthane [42]. Leur nature tubulaire n'a été mise en évidence qu'en 1952 [43] avec les progrès de la microscopie électronique en transmission (TEM, *Transmission Electron Microscopy*). Cependant, cette découverte, publiée en russe, n'a pas eu un impact très marqué sur la communauté scientifique. Ce n'est qu'en 1991, dans le contexte de la découverte des fullerènes en 1985 et de l'intérêt croissant pour les nanotechnologies, que l'article de Sumio Iijima [10] a véritablement lancé la recherche sur les nanotubes de carbone (CNT). Des images TEM des CNT obtenues en 1952 et en 1991 sont présentées figure 1.1.

Depuis, des progrès de la synthèse et de la purification des nanotubes, abordés partie 1.2.1, ont permis des avancées majeures dans leurs applications. Ils présentent des propriétés exceptionnelles dans de nombreux domaines :

- D'un point de vue mécanique, ils entrent aussi dans la composition de fibres d'une résistance et d'une raideur sans précédent [44] (respectivement 2 GPa et 300 GPa) qui atteignent maintenant une longueur centimétrique [45]. Ils permettent de réaliser des *muscles artificiels* contrôlés optiquement ou thermiquement qui soulèvent 650 fois leur poids [46].
- Des transistors à effet de champ peuvent être réalisés à partir de CNT [47]. Actuellement, leur conductance s'approche de la limite quantique et, en réseau, leur densité de courant dépasse celle d'un circuit équivalent en silicium ou en arséniure de gallium [48]. Un ordinateur vérifiant les critères de Turing a déjà été fabriqué à partir de ces derniers et a l'avantage de reposer sur une architecture 3D idéale pour manier des flux importants de données [49].
- En médecine, les CNT servent de marqueurs biologiques, de supports pour véhiculer et relâcher des médicaments localement et aident à la reconstruction de certains tissus [50]. Par exemple, ils participent au rétablissement de la communication entre deux morceaux de moelle épinière sectionnés [51].

- En ce qui concerne l'optique, les CNT sont remarquablement polyvalents. Ils concurrencent à la fois l'oxyde d'indium étain comme matériau conducteur transparent utilisé, par exemple, dans les panneaux photovoltaïques [52] et à l'inverse, à forte concentration, ils constituent le matériau le plus noir jamais synthétisé en absorbant jusqu'à 99,955% de la lumière visible [53]. Cette variabilité d'absorption est aussi utilisée de manière dynamique en l'incorporant à un vêtement qui adapte les pertes radiatives du corps humain de 35% en fonction de son environnement [54].

Dans cette thèse, seules les propriétés optiques des CNT seront détaillées. Pour ce faire, la partie 1.1.1 décrit leur géométrie et déduit leur structure de bande en s'appuyant sur celle du graphène. Les transitions optiques accessibles sont données dans la partie 1.1.2 en prenant en compte les effets dus à l'interaction entre l'électron excité et le trou laissé dans la bande de valence (c'est-à-dire la présence d'un exciton). Enfin, la partie 1.3 est consacrée à l'une des propriétés des CNT qui motive cette thèse : l'émission de photons uniques dans les bandes télécoms.

1.1.1 Structure de bande

Les nanotubes de carbone sont des tubes de diamètre nanométrique et de longueur de l'ordre du micromètre : ils sont quasiment unidimensionnels. Or la densité d'états de ce type d'objet présente des singularités et évolue proportionnellement à $1/\sqrt{E}$ où E désigne une énergie. Ce type de nanostructures est peu courant et leur étude présente un intérêt fondamental.

1.1.1.1 Structure spatiale

Comme visible sur l'image de TEM à droite de la figure 1.1, les nanotubes de carbone peuvent être formés de plusieurs cylindres imbriqués les uns dans les autres. Ce sont des nanotubes multi-parois. Des nanotube mono-parois ont pu être observés à partir de 1993 [55, 56]. Leur photoluminescence est étudiée depuis 2002 [13] et ce sont ceux utilisés dans cette thèse¹.

1. La photoluminescence du nanotube intérieur d'un double paroi a déjà été observée mais son rendement quantique est très faible ($\sim 10^{-6}$) [57].

1.1. PROPRIÉTÉS DES NANOTUBES DE CARBONE

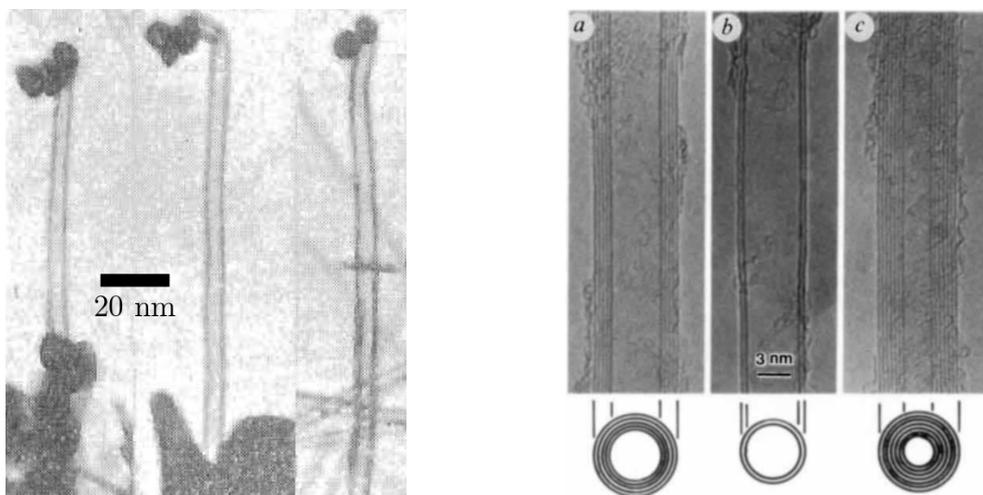


FIGURE 1.1 – **À gauche** : L'une des premières images de nanotubes de carbone sous microscopie électronique en transmission (TEM) datant de 1952. Tirée de [43]. **À droite** : Image TEM de nanotubes de carbone avec les feuillets résolus (lignes noires). Tirée de l'article d'Iijima de 1991 [10].

La paroi des CNT est formée d'un réseau en nid d'abeille d'atomes de carbone. Il est pratique de se reposer sur la structure bien connue du graphène pour déduire celle des CNT. D'après le schéma 1.2, un CNT peut être vu comme une couche de graphène enroulée sur elle-même.

Le graphène est un cristal bidimensionnel constitué d'atomes de carbone organisés en nid d'abeille liés entre eux par des liaisons sp^2 . Il a été obtenu pour la première fois en 2004 par Andre Geim et son doctorant Konstantin Novoselov ce qui leur a valu le prix Nobel en 2010. La distance séparant deux atomes de carbone vaut $a_{C-C} = 1,42 \text{ \AA}$ [58]. La maille de Wigner-Seitz de ce cristal est représentée en grisé figure 1.2, elle est décrite par le paramètre de maille $a = \sqrt{3}a_{C-C}$ et par les vecteurs :

$$\mathbf{a}_1 = \frac{a}{2} \begin{pmatrix} \sqrt{3} \\ -1 \end{pmatrix} \text{ et } \mathbf{a}_2 = \frac{a}{2} \begin{pmatrix} \sqrt{3} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

À cette maille est associé un motif de deux atomes de carbone placés en $(0, 0)$ et en $(1/\sqrt{3}, 0)$, ce sont les points A et B figure 1.2.

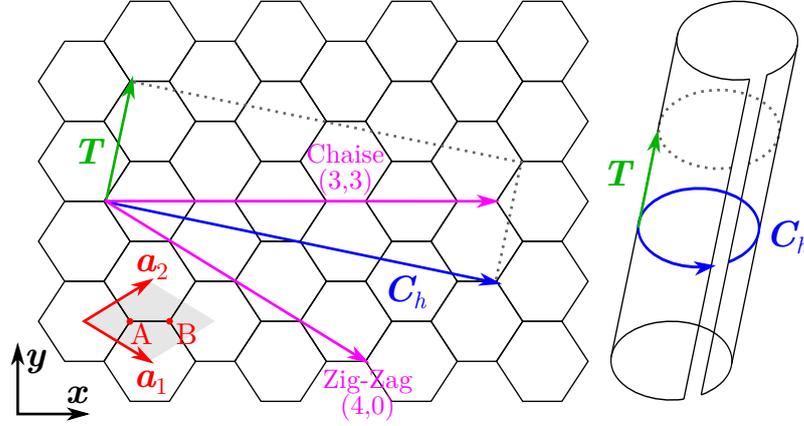


FIGURE 1.2 – Construction d'un nanotube mono-paroi de chiralité $(n, m) = (4, 2)$ à partir d'une feuille de graphène. Le nanotube est enroulé selon le vecteur chiral $\mathbf{C}_h = n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2$. Avec le vecteur transverse \mathbf{T} , ce vecteur définit la brique élémentaire du nanotube. La maille de Wigner-Seitz du graphène est représentée en grisé et les vecteurs de base ainsi que le motif en rouge. Les vecteurs chiraux de deux nanotubes particuliers (chaise et zig-zag) sont tracés en fuchsia.

Pour obtenir un nanotube de carbone, il faut enrouler le graphène de façon à superposer les atomes aux extrémités du feuillet. Seules des configurations discrètes sont autorisées. Ainsi, un nanotube de carbone est défini de manière univoque par le vecteur chiral \mathbf{C}_h représentant sa circonférence :

$$\mathbf{C}_h = n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2 \quad \text{où } (n, m) \in \mathbb{N}^2 \quad (1.2)$$

Le diamètre du nanotube vaut donc :

$$d_{\text{NT}} = \frac{C_h}{\pi} = \frac{a}{\pi} \sqrt{n^2 + nm + m^2} \quad (1.3)$$

La maille élémentaire est donnée par le vecteur \mathbf{C}_h et le vecteur transverse \mathbf{T} , le plus petit vecteur du réseau du graphène orthogonal à \mathbf{C}_h . \mathbf{T} s'exprime à partir des indices (n, m) [58] :

$$\mathbf{T} = \frac{1}{P_{nm}} (-(n + 2m)\mathbf{a}_1 + (2n + m)\mathbf{a}_2) \quad (1.4)$$

où P_{nm} est le plus grand diviseur commun de $2m + n$ et $2n + m$. Cette maille élémentaire est utilisée dans les calculs mais ne reflète pas directement les propriétés physiques des CNT à l'inverse de l'angle chiral θ qui intervient dans les propriétés optiques comme électroniques. Cet angle apparaît entre les vecteurs \mathbf{T} et \mathbf{a}_1 :

$$\cos \theta = \frac{2n + m}{2\sqrt{n^2 + nm + m^2}} = \frac{2n + m}{\pi} \frac{a}{d_{\text{NT}}} \quad (1.5)$$

La figure 1.3 représente l'angle chiral sur la structure de quelques nanotubes

1.1. PROPRIÉTÉS DES NANOTUBES DE CARBONE

particuliers. Par symétrie du réseau, l'angle chiral est limité à 60° . Par exemple, le nanotube $(10, 0)$ d'angle chiral 0° et le $(0, 10)$ d'angle chiral de 60° décrivent le même nanotube. Les nanotubes de type $(n, 0)$ sont appelés *zigzag* en référence à l'agencement des nanotubes de carbone sur leur circonférence visibles figures 1.2 et 1.3. De même, les nanotubes (n, n) sont appelés *chaise* (*armchair*) et ont un angle chiral de 30° . Ces deux types de nanotubes sont achiraux tandis que pour les autres nanotubes (n, m) et (m, n) sont des énantiomères. Étant donné qu'aucune expérience dans cette thèse n'est liée à la chiralité, seul le cas où $n \geq m$ sera considéré (cela correspond à $\theta \leq 30^\circ$).

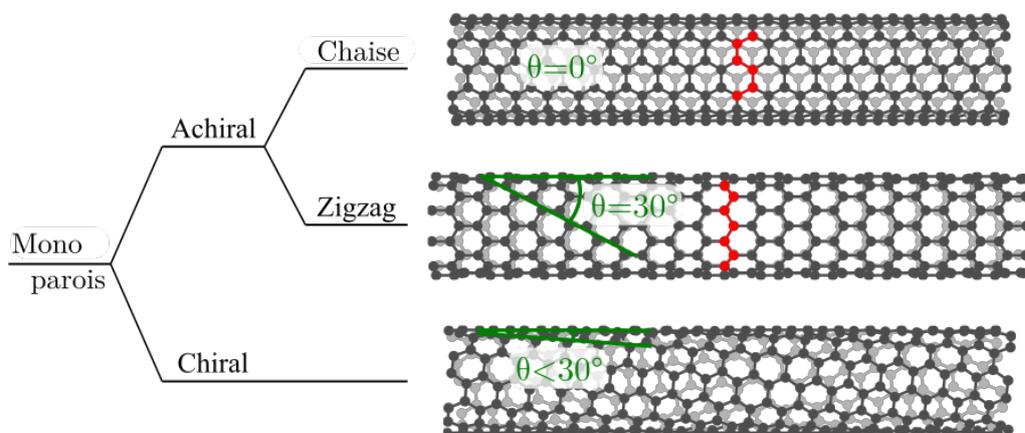


FIGURE 1.3 – Représentation de la structure spatiale et de l'angle chiral de quelques nanotubes particuliers. Adapté de [59].

Le nombre d'atomes N_l par unité de longueur du nanotube ne dépend que du diamètre :

$$N_l = \frac{2}{\sqrt{3}a} \sqrt{n^2 + nm + m^2} = \frac{2\pi}{\sqrt{3}} \frac{d_{\text{NT}}}{a^2} \quad (1.6)$$

Le tableau 1.1 donne quelques exemples de chiralités avec les valeurs de d_{NT} , θ , et N_l .

CHAPITRE 1. PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES NANOTUBES DE CARBONE

TABLE 1.1 – Quelques valeurs de diamètre d_{NT} , d'angle chiral θ et du nombre d'atomes par unité de longueur N_l en fonction de la chiralité. Des nanotubes (6,5), (7,5), (9,7) et (10,8) ont été étudiés dans cette thèse tandis que les nanotubes (10,0) et (10,10) ne sont donnés qu'en guise d'exemple de nanotubes respectivement zigzag et chaise.

Chiralité	d_{NT} (nm)	θ (°)	N_l (nm ⁻¹)
(10,0)	0,794	0	47,6
(6,5)	0,757	27	45,4
(7,5)	0,829	24,5	49,7
(9,7)	1,103	25,87	66,1
(10,8)	1,240	26,33	74,4
(10,10)	1,356	30	81,3

Tout comme la géométrie des CNT est simplement décrite à partir de celle du graphène, il en va de même pour son espace réciproque. Pour rappel, la première zone de Brillouin (PZB) du graphène est donnée par les vecteurs \mathbf{b}_1 et \mathbf{b}_2 vérifiant $\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{b}_j = 2\pi\delta_{ij}$ où δ_{ij} est le symbole de Kronecker. Ils valent :

$$\mathbf{b}_1 = \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} \begin{pmatrix} 1 \\ -\sqrt{3} \end{pmatrix} \text{ et } \mathbf{b}_2 = \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} \begin{pmatrix} 1 \\ \sqrt{3} \end{pmatrix} \quad (1.7)$$

La PZB, les vecteurs \mathbf{b}_1 et \mathbf{b}_2 et les points de haute symétrie K , K' , M et Γ sont représentés figure 1.4.

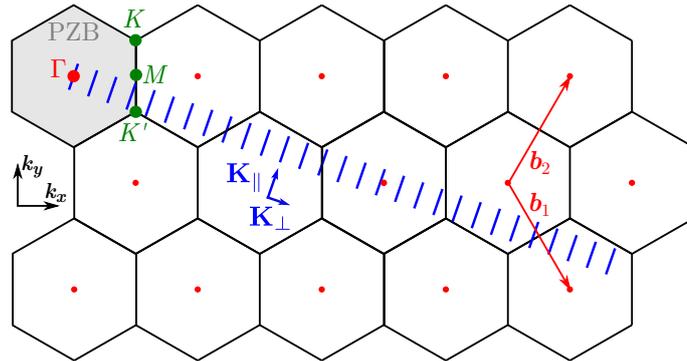


FIGURE 1.4 – Réseau réciproque du graphène est tracé en noir et sa PZB en gris. Le centre Γ de cette PZB ainsi que les vecteurs \mathbf{b}_1 et \mathbf{b}_2 sont en rouge et les points critiques K , K' et M sont en vert. La PZB d'un nanotube de carbone (4,2) et ses vecteurs \mathbf{K}_{\parallel} et \mathbf{K}_{\perp} sont en bleu. Adapté de [60].

De la même manière, pour un nanotube de carbone, les vecteurs \mathbf{K}_{\parallel} et \mathbf{K}_{\perp} de la PZB vérifient :

$$\mathbf{C}_h \cdot \mathbf{K}_{\parallel} = 0, \quad \mathbf{C}_h \cdot \mathbf{K}_{\perp} = 2\pi, \quad \mathbf{T} \cdot \mathbf{K}_{\parallel} = 2\pi \quad \text{et} \quad \mathbf{T} \cdot \mathbf{K}_{\perp} = 0 \quad (1.8)$$

1.1. PROPRIÉTÉS DES NANOTUBES DE CARBONE

Les conditions de bord périodiques données au graphène lors de l'enroulement conduisent à une quantification dans l'espace réciproque. Ainsi, la PZB d'un nanotube de carbone est quantifiée dans l'axe \mathbf{K}_\perp . En notant, N_m le nombre d'atome dans la maille élémentaire², la projection d'un vecteur d'onde \mathbf{k} sur l'axe \mathbf{K}_\perp ne peut prendre que les valeurs suivantes :

$$k_\perp = \mu K_\perp = \mu \frac{2}{d_{\text{NT}}} \quad \text{où } \mu \in [1, \dots, N_m] \quad (1.9)$$

Par contre, le rapport d'aspect des CNT est suffisamment élevé pour que la projection de \mathbf{k} sur \mathbf{K}_\parallel puisse prendre des valeurs quasi-continues. Ainsi, l'aire de la PZB, utile par la suite, d'un CNT est homogène à l'inverse d'une distance et vaut :

$$\Omega_{\text{PZB}} \equiv \int d\mathbf{k} = N_m K_\parallel = \frac{4\pi^2}{\sqrt{3}} \frac{d_{\text{NT}}}{a^2} \quad (1.10)$$

La figure 1.4 donne un exemple de PZB d'un nanotube (4,2) d'angle chiral $19,1^\circ$. Aucun des points K et K' du réseau réciproque du graphène n'est intersecté par cette PZB : ce nanotube n'est pas métallique. Ce raisonnement est détaillé dans la partie suivante en rappelant la structure de bande du graphène.

1.1.1.2 Densité d'états

Le graphène est un matériau bidimensionnel dont la cohésion est assurée par des liaisons entre orbitales hybridées sp^2 . Les orbitales p non hybridées sont perpendiculaires au plan du graphène et forment des liaisons π . Le comportement électronique est modélisé convenablement en ne prenant en compte que ces électrons π plus mobiles dont l'énergie est proche du niveau de Fermi. La relation de dispersion est calculée à partir du modèle des liaisons fortes (limité à l'interaction des plus proches voisins) [61] :

$$E(\mathbf{k}) = \pm \gamma_0 \sqrt{1 + 4 \cos \frac{\sqrt{3}}{2} a_{C-C} k_x \cos \frac{1}{2} a_{C-C} k_y + 4 \cos^2 \frac{1}{2} a_{C-C} k_y} \quad (1.11)$$

Les deux nappes d'énergie symétriques par rapport à $E = 0$ correspondent à la bande de valence $E < 0$ et à la bande de conduction $E > 0$. L'énergie d'interaction γ_0 entre deux sites voisins vaut environ 2,8 eV. La figure 1.5 montre une coupe de cette structure de bande sur les segments $M\Gamma$ et ΓK . La dispersion 1.11 est représentée dans la PZB dans la figure 1.6.

2. Le nombre d'atomes dans la maille vaut $N_m = \frac{2(n^2 + nm + m^2)}{P_{nm}} = \frac{2\pi^2}{P_{nm}} \left(\frac{d_{\text{NT}}}{a}\right)^2$.

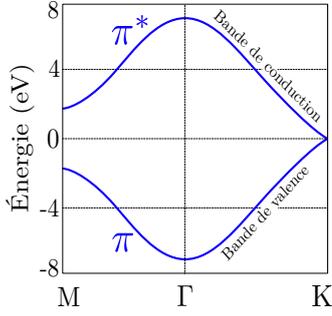


FIGURE 1.5 – Structure de bande du graphène pris le long des segments ΓK et ΓM . Les bandes de valence (π) et de conduction (π^*) se croisent au point K . Tiré de [60].

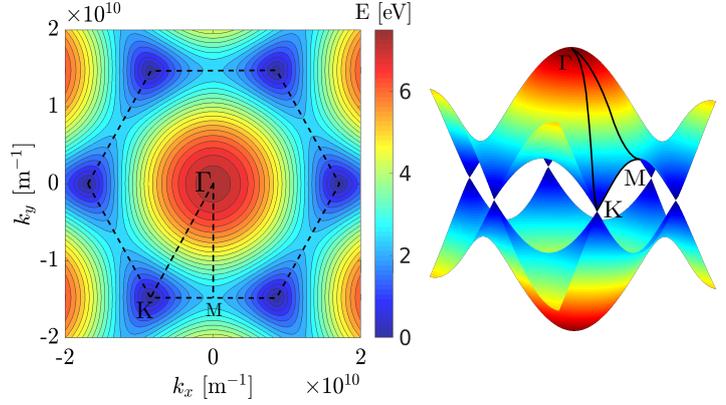


FIGURE 1.6 – Dispersion du graphène définie dans l'équation 1.11. L'échelle de couleur et celle verticale pour la vue 3D représentent l'axe des énergies. La bande de valence et la bande de conduction sont dégénérées aux points K et K' . À proximité de ces points, la dispersion est linéaire : ce sont les cônes de Dirac. Les segments ΓK et ΓM tracés figure 1.5 sont matérialisés en noir. Tiré de [60].

Aux points K et K' , les bandes de conduction et de valence sont dégénérées ce qui rend le graphène conducteur à température ou dopage non nuls. À proximité de ces points, la dispersion est linéaire et de symétrie circulaire : il s'agit des cônes de Dirac. Elle s'écrit comme suit :

$$E(\mathbf{k}) = \pm \hbar v_F k \quad \text{où } v_F = \frac{\sqrt{3}}{2\hbar} \gamma_0 a$$

où v_F est la vitesse de Fermi des électrons et vaut environ $9 \times 10^5 \text{ m s}^{-1}$.

D'après l'approximation du repliement de zone [62] (*zone folding*), la structure de bandes des CNT est obtenue en réalisant des coupes verticales de celle du graphène pour chaque \mathbf{k} tel que $k_{\perp} = \mu k_{\perp}$ (voir relation 1.9). Si ces coupes passent par les points K ou K' , le nanotube est métallique sinon il est semi-conducteur comme décrit dans la figure 1.7. En effet, les bandes de valence et de conduction sont les plus proches à proximité des points K et K' et seuls deux cas sont possibles :

- Une coupe passe par un point K ou K' , l'énergie peut s'annuler. La dispersion est linéaire et la densité d'état est non nulle à proximité de $E = 0$: les électrons peuvent passer librement de la bande de valence à la bande de conduction, le nanotube est métallique.
- Aucune coupe n'intersecte les points K et K' , une bande d'énergie est interdite autour de $E = 0$. Le nanotube est semi-conducteur et peut a priori émettre un signal de photoluminescence.

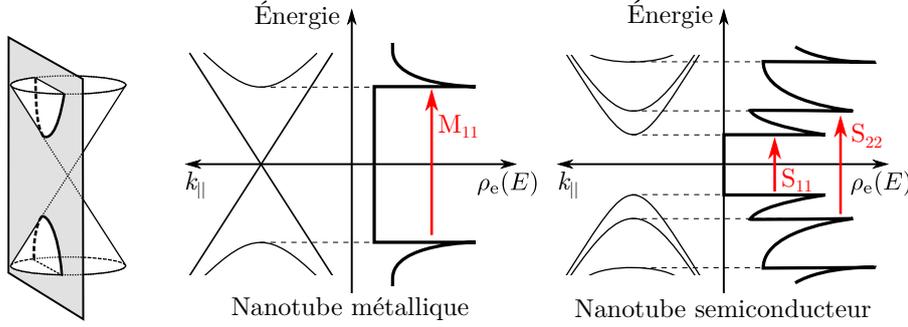


FIGURE 1.7 – Structure de bande de nanotubes de carbone obtenue par des coupes verticales dans celle du graphène. Deux cas se présentent : soit une coupe passe par un point K ou K' et le nanotube est métallique soit il est semi-conducteur et autorise a priori des transitions optiques. Adapté de [63].

La relation de dispersion des nanotubes de carbone autour des points K et K' pour la bande d'indice μ s'écrit :

$$E_{\mu}(\mathbf{k}) = \pm \sqrt{(\hbar v_F \delta k_{\parallel})^2 + E_{\mu,0}^2} \quad \text{avec } E_{\mu,0} = |3\mu - n + m| \frac{a_{C-C}}{d_{NT}} \gamma_0 \quad (1.12)$$

où $\delta k_{\parallel} \equiv (\mathbf{k} - \mathbf{k}_K) \cdot \frac{\mathbf{K}_{\parallel}}{K_{\parallel}}$ est la distance au point K projeté sur la direction \mathbf{K}_{\parallel} . L'énergie minimale de la bande de conduction vaut $E_{\mu,0}$ et est proportionnelle à $|3\mu - n + m|$. Deux cas sont possibles :

- $n - m \bmod 3 = 0$, il existe une valeur de μ pour laquelle $E_{\mu,0}$ s'annule. La PZB du nanotube passe par les points K ou K' , le nanotube est métallique (à gauche de la figure 1.7).
- $n - m \bmod 3 \neq 0$, l'écart d'énergie minimal entre la bande de conduction et celle de valence vaut $E_g = 2\gamma_0 \frac{a_{C-C}}{d_{NT}}$ (à droite de la figure 1.7) : le nanotube est semi-conducteur. La largeur de la bande interdite est inversement proportionnelle à son diamètre.

Dans la formule 1.12, l'énergie ne dépend que de δk_{\parallel} . Pour plus de lisibilité, δk_{\parallel} est simplement noté k par la suite.

La contribution à la densité d'état d'une bande unidimensionnelle s'écrit [64] :

$$\rho_{e,\mu}(E) = \frac{2}{\Omega_{PZB}} \int dk \delta(E - E_{\mu}(k)) \left| \frac{\partial E_{\mu}}{\partial k} \right|^{-1} \quad (1.13)$$

où Ω_{PZB} est l'aire de la PZB d'un nanotube de carbone (relation 1.10) et le facteur 2

vient de la dégénérescence de spin. La densité d'états totale s'écrit [65] :

$$\rho_e(E) = \frac{\sqrt{3}}{\pi^2} \frac{E_g}{\gamma_0^2} \sum_{\mu} g(E, E_{\mu,0}) \quad g(E, E_{\mu,0}) = \begin{cases} |E|/\sqrt{E^2 - E_{\mu,0}^2} & \text{si } |E| > E_{\mu,0} \\ 0 & \text{si } |E| < E_{\mu,0} \\ 1 & \text{si } E_{0,\mu} = 0 \end{cases} \quad (1.14)$$

Des singularités de la densité d'état apparaissent lorsque l'énergie vérifie $E = E_{\mu,0}$. Ces singularités sont dites de Van Hove et caractérisent les structures unidimensionnelles [66]. La partie suivante permet, à partir de cette densité d'états, de définir les transitions optiques autorisées pour les nanotubes de carbone semi-conducteurs. Les écarts entre la dispersion des nanotubes de carbone et celle calculée sous l'approximation de repliement de zone y seront aussi abordés.

1.1.2 Transitions optiques

Dans cette partie, les transitions les plus probables sont déterminées par la règle d'or de Fermi et leurs règles de sélection sont précisées. Puis, l'écart entre les mesures expérimentales des énergies caractéristiques de ces transitions et celles obtenues par le modèle de repliement de zone est expliqué par des effets excitoniques. Lorsqu'un électron est promu dans un niveau excité, il interagit avec le trou laissé dans la bande de valence pour former une quasi-particule appelée exciton. L'énergie d'interaction coulombienne est suffisamment importante pour modifier significativement l'énergie des transitions. La présence d'excitons modifie significativement les spectres d'émission et d'absorption des CNT, elle fait l'objet de la partie 1.1.2.2.

1.1.2.1 Règles de sélection

D'après la règle d'or de Fermi, le taux de transition $W_{V \rightarrow C}$ de la bande de valence vers la bande de conduction s'écrit :

$$W_{V \rightarrow C}(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |M(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2 [f_{\text{FD}}(E_V(\mathbf{k})) - f_{\text{FD}}(E_C(\mathbf{k}'))] \delta(E_C(\mathbf{k}') - E_V(\mathbf{k}) - \hbar\omega) \quad (1.15)$$

Cette relation traduit les critères suivants :

- $|M(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2$ désigne l'élément de matrice optique qui rend compte de l'interaction matière rayonnement [67]. Il permet de tirer les règles de sélections détaillées par la suite. Dans le cadre de cette thèse, les énergies optiques vérifient $\hbar\omega \ll 2\gamma_0 \approx 5,6 \text{ eV}$ (largeur de la bande interdite au point M) donc les vecteurs d'onde \mathbf{k} et \mathbf{k}' restent dans le voisinage des points K et K' . Or, $|M(\mathbf{k}, \mathbf{k}')|^2$ évolue faiblement à proximité de ces points [68]. Les taux de transitions sont dominés par la densité d'état définie partie 1.1.1.2.

1.1. PROPRIÉTÉS DES NANOTUBES DE CARBONE

- $f_{\text{FD}}(E) \equiv \frac{1}{1+\exp(\frac{E}{k_{\text{B}}T})}$ désigne la distribution de Fermi-Dirac.

$$[f_{\text{FD}}(E_{\text{V}}(\mathbf{k})) - f_{\text{FD}}(E_{\text{C}}(\mathbf{k}'))] \quad (1.16)$$

donne la probabilité corrélée de trouver un électron en \mathbf{k} dans la bande de valence et un électron en \mathbf{k}' dans la bande de conduction.

- La fonction de Dirac $\delta(E_{\text{C}}(\mathbf{k}') - E_{\text{V}}(\mathbf{k}) - \hbar\omega)$ assure la conservation de l'énergie : l'énergie du photon absorbé doit correspondre à la différence d'énergie entre les états initial et final.

Lors de la transition, le vecteur d'onde doit aussi se conserver donc $\mathbf{k}' - \mathbf{k} - \mathbf{k}_p = 0$ où \mathbf{k}_p est le vecteur d'onde du photon.

Or, pour le photon $k_p = \frac{2\pi}{\lambda} < 1 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ tandis que pour les électrons $k \sim \frac{2\pi}{a_0} = 2,6 \times 10^{10} \text{ m}^{-1}$. Ainsi $k_p \ll k, k'$ et $\mathbf{k} \approx \mathbf{k}'$.

L'impulsion de l'électron se conserve donc les transitions autorisées sont verticales dans la structure de bande. La transition entre les bandes μ et ν est notée $S_{\mu\nu}$ pour les nanotubes semi-conducteurs et $M_{\mu\nu}$ pour les métalliques (voir figure 1.7). Pour $S_{\mu\nu}$, l'expression de l'élément de matrice $|M(\mathbf{k}, \mathbf{k})|^2$ impose [69] :

- $\mu - \nu = 0$ pour une polarisation de la lumière parallèle à l'axe du nanotube (parallèle à \mathbf{K}_{\parallel}).
- $\mu - \nu = \pm 1$ pour une polarisation de la lumière perpendiculaire à l'axe du nanotube (parallèle à \mathbf{K}_{\perp}). Ce dernier cas est nettement défavorisé puisque l'accumulation de charges sur les parois du nanotube crée un champ dépolarisant qui s'oppose au champ incident et atténue considérablement la transition.

Sur la figure 1.8 l'intensité d'émission expérimentale d'un nanotube individuel est représentée en fonction de la polarisation du laser d'excitation (à gauche) ou en fonction de la polarisation filtrant la collection (à droite). Sachant que le laser est à une énergie nettement supérieure à celle de la bande interdite (excitation hors résonance), cela illustre la règle de sélection en polarisation. L'absorption comme l'émission sont maximales lorsque la polarisation est parallèle à l'axe du nanotube.

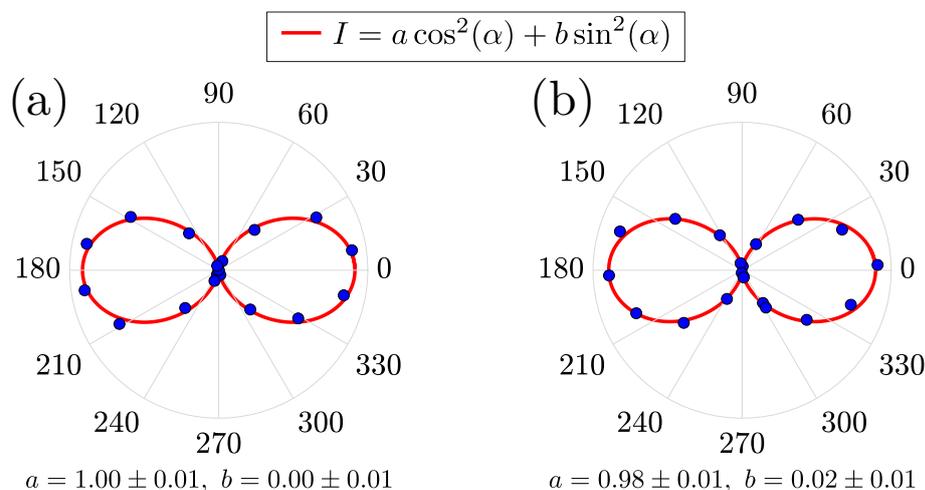


FIGURE 1.8 – Réponse expérimentale en polarisation d'un nanotube de carbone : (a) en absorption , (b) en photoluminescence.

Ainsi, les transitions $S_{\mu\mu}$ sont les plus probables et l'énergie qui leur est associée vaut $\mu E_g = 2\mu\gamma_0 \frac{a_C - c}{d_{NT}}$ pour $\mu \bmod 3 \neq 0$ (nanotubes semi-conducteurs). Les valeurs de E_g sont calculées dans le tableau 1.2 et comparées aux valeurs tabulées.

TABLE 1.2 – Les énergies E_g des transitions S_{11} sont données pour les chiralités présentées dans le tableau 1.1. Les valeurs expérimentales $h\nu_{11}$ sont tirées de [70]. Il existe un écart de 200 à 300 meV entre l'énergie donnée par le modèle du repliement de zone et celle mesurée. Les nanotubes de chiralité (9,7) et (10,8) émettent dans les bandes télécoms (entre 0,8 et 0,95 eV).

Chiralité	(10,0)	(6,5)	(7,5)	(9,7)	(10,8)	(10,10)
E_g	0,98	1,03	0,94	0,71	0,63	-
$h\nu_{11}$ [70]	1,34	1,31	1,22	0,93	0,83	métallique

L'écart entre la valeur de E_g calculée à partir du modèle de repliement de zone et l'énergie des transitions S_{11} mesurées expérimentalement s'explique par les effets excitoniques traités dans la partie suivante.

1.1.2.2 Effets excitoniques

Le modèle décrit dans la partie précédente suppose les électrons indépendants. Cependant, le confinement dans le CNT induit des interactions particulièrement importantes entre porteurs de charge. Un électron promu dans la bande de conduction est à la fois repoussé par d'autres électrons et attiré par un trou laissé dans la bande de valence. L'interaction coulombienne entre électrons augmente l'énergie de transition tandis que celle avec le trou l'abaisse. La force de Coulomb entre l'électron excité et le trou est suffisamment marquée pour former une quasi-particule appelée exciton.

1.1. PROPRIÉTÉS DES NANOTUBES DE CARBONE

Ce système hydrogénoïde peut présenter des états discrets d'énergies à l'intérieur de la bande interdite.

L'interaction répulsive (ou *self energy* dans la littérature) et l'énergie de liaison ont des contributions opposées. En pratique, comme constaté dans le tableau 1.2, ces interactions ont pour effet d'augmenter l'énergie des transitions S_{11} . Elle est plus élevée de 200 à 300 meV que celle calculée avec le modèle des électrons indépendants pour les nanotubes considérés dans cette thèse. Pour fixer les idées, l'énergie de l'exciton est donnée par la formule [71] :

$$E_X(\mathbf{K}) = E_g + E_{\text{rép}} + \frac{\hbar^2 K^2}{2M} - \frac{R^*}{\alpha^2} \quad \text{avec } \alpha \in \mathbb{N}^* \quad (1.17)$$

où $\mathbf{K} \equiv \mathbf{k}_e + \mathbf{k}_t$ est le vecteur d'onde du centre de masse de l'exciton, $E_{\text{rép}}$ est l'énergie d'interaction répulsive, $M = m_e + m_t$ est la masse de l'exciton et $R^* = \frac{m^* e^4}{2\hbar^2 (4\pi\epsilon)^2}$ est l'énergie de liaison (avec ϵ la permittivité diélectrique ressentie par l'exciton, e la charge de l'électron et m^* la masse réduite de l'exciton) appelée aussi énergie de Rydberg de l'exciton. Pour les nanotubes de carbone, R^* se situe entre 300 et 400 meV [72]. Contrairement aux matériaux massifs ($R^* \approx 10$ meV [73]), les effets excitoniques des CNT perdurent à température ambiante ($R^* \gg k_B T \approx 26$ meV). Ce phénomène provient du confinement et du faible écrantage du fait de l'échappement des lignes de champs dans le vide ou le matériau environnant de faible permittivité diélectrique.

Par analogie avec l'atome d'hydrogène, il est possible de définir un rayon de Bohr r_B de l'exciton qui vérifie $r_B = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{m_r e^2}$. Ce rayon de Bohr est de l'ordre de quelques nanomètres pour des nanotubes d'environ 1,2 nm de diamètres [74]. La fonction d'onde de l'exciton déborde du CNT ce qui le rend très sensible à son environnement immédiat [25]. Une augmentation de la permittivité diélectrique induit un écrantage qui diminue les interactions répulsives mais son influence sur l'interaction entre l'électron et le trou est plus complexe [75, 76]. En définitive, cela engendre un décalage de la transition S_{11} vers le rouge. Plus généralement, ce décalage s'observe aussi dans le cas où des molécules sont introduites à l'intérieur du CNT [77] ou dans le cas de sa fonctionnalisation [63, 78, 79]. Les effets excitoniques sont résumés sur la figure 1.9.

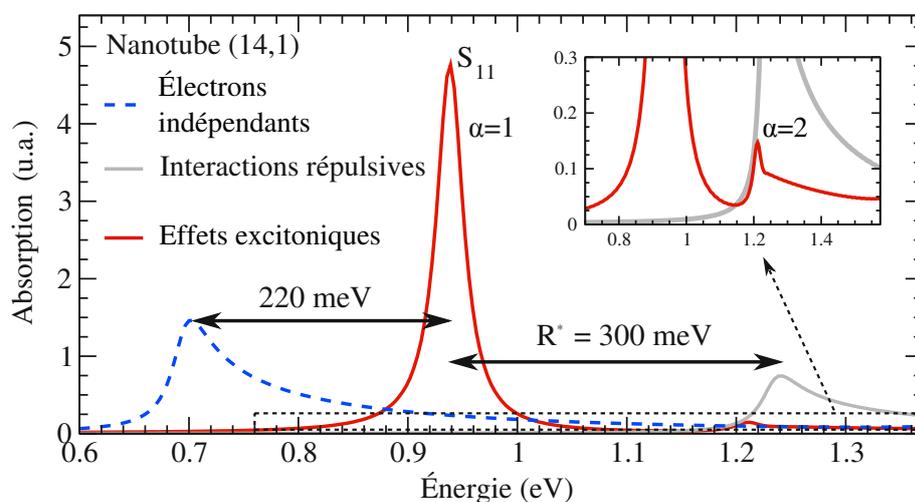


FIGURE 1.9 – Effets excitoniques sur l’absorption d’un nanotube de carbone. Dans le cas d’un nanotube (14,1) ces effets reviennent à augmenter la transition S_{11} de 220 meV par rapport au modèle des électrons indépendants. La S_{11} correspond au niveau $\alpha = 1$ de l’exciton. Bien que moins intense, l’effet du niveau $\alpha = 2$ et du continuum d’énergie est visible sur l’absorption dans l’encart (zoom du cadre en pointillé). Adaptée de [80].

La présence de ces états discrets d’énergie plus basse que le continuum a été démontrée à température ambiante par des expériences d’absorption à deux photons [23, 81]. Si les expériences d’absorption donnent accès à l’énergie des niveaux excitoniques et à l’énergie minimale du continuum, ce n’est pas le cas des expériences de photoluminescence. En effet, seule la transition S_{11} apparaît dans les spectres d’émission des nanotubes. Ce phénomène est dû aux différences de temps de vie entre l’état excitonique fondamental et les autres niveaux excités. Comme illustré figure 1.10, lorsqu’un électron est excité à une énergie supérieure à celle de S_{11} (excitation hors-résonance) il relaxe en quelques femtosecondes vers le niveau excitonique fondamental [82]. Puis, il reste dans ce niveau pendant un temps de vie de plusieurs dizaines de picosecondes à plusieurs nanosecondes [83, 84, 37, 31] avant d’éventuellement se désexciter radiativement.

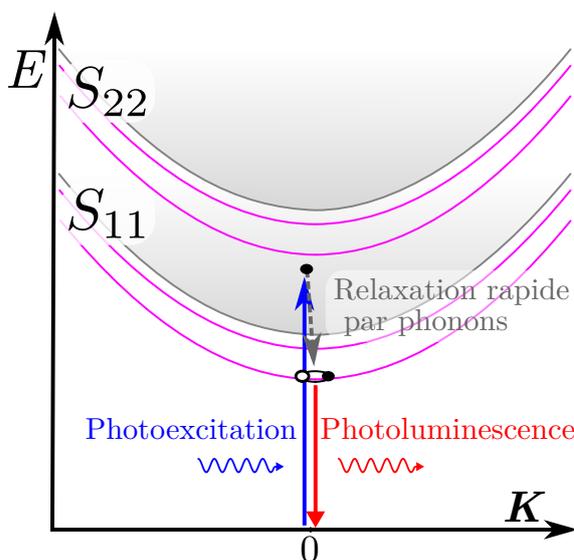


FIGURE 1.10 – Schéma de principe de la photoluminescence hors-résonance. Une source d'excitation excite un électron à une énergie supérieure à celle de la transition S_{11} . L'électron se désexcite non radiativement vers l'état excitonique fondamental en émettant des phonons pour ensuite se désexciter en émettant éventuellement un photon. Tirée de [60].

Dans cette thèse, l'excitation hors-résonance est ajustée à environ 200 meV au dessus de S_{11} [85]. Pour expliquer cette absorption particulière, il est nécessaire de compléter le modèle excitonique en prenant en compte la dégénérescence des points K et K' (dégénérescence de vallée). Chaque état hydrogénoïde α est formé de l'interaction de 4 bandes (une bande de conduction et une bande de valence pour K et pour K') qui engendre les 4 bandes excitoniques [86] visibles figure 1.11. Pour les deux bandes centrales, l'exciton est formé par un électron et un trou issus d'une même vallée. Pour la bande centrale basse en énergie, la fonction d'onde de l'exciton est symétrique tandis qu'elle est antisymétrique pour l'autre³. Ainsi, seule la bande centrale haute peut se coupler à la lumière : l'exciton est dit *brillant*. Pour la bande centrale basse, l'exciton est *noir*. Les deux bandes latérales sont formées d'un électron et d'un trou issus de vallées différentes : leur vecteur d'onde de centre de masse est non nul. En général, leur moment angulaire est également non nul : ce sont des excitons noirs. Bien qu'il ne soit pas directement couplé à la lumière, un exciton noir peut se former par absorption assistée par l'émission d'un phonon optique comme détaillé sur la figure 1.11. L'exciton noir formé peut ensuite relaxer vers l'état brillant en émettant des phonons. Bien que la différence d'énergie entre les excitons noirs et l'exciton brillant dépende de la chiralité, elle reste de l'ordre de 35 meV pour les excitons noirs latéraux et de quelques meV pour l'exciton noir central. Le pic d'absorption à 200 meV s'explique par l'implication un phonon longitudinal optique de bord de bande d'une énergie d'environ 165 meV. Il provient donc d'une bande

3. Cette symétrie peut être brisée par l'application d'un champ magnétique [59]

latérale de phonon (PSB pour *Phonon Side Band*), il est noté X_2 dans la littérature.

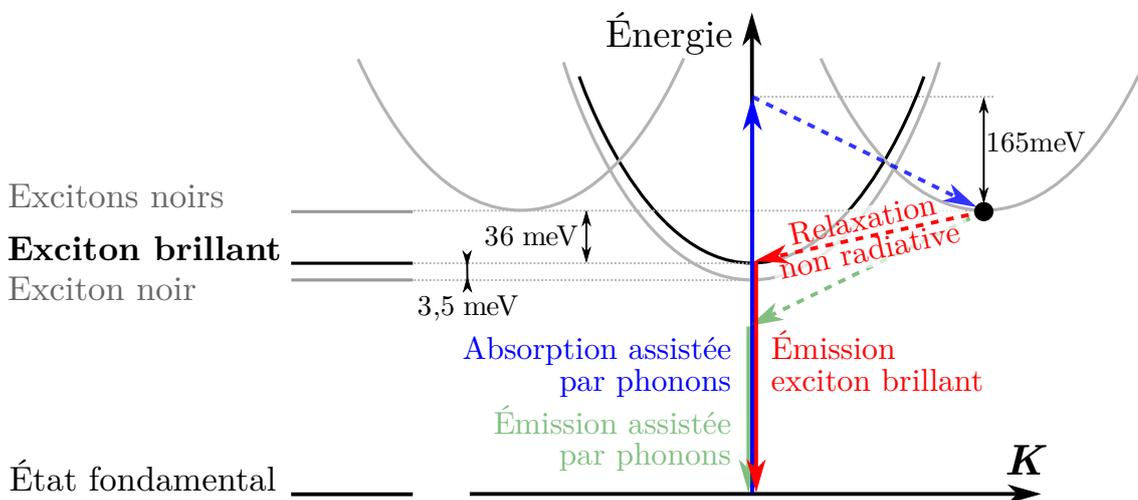


FIGURE 1.11 – Bandes excitoniques issues de la dégénérescence KK' (3 excitons noirs et un exciton brillant). Un phénomène d'absorption assistée par phonon (flèches bleues) explique une élévation de la photoluminescence pour une énergie d'excitation à environ 200 meV au dessus de la S_{11} . Cette excitation peuple préférentiellement les excitons noirs latéraux qui relaxent non radiativement vers l'exciton brillant. La probabilité de l'émission assistée par phonon (en vert) réciproque à l'absorption reste faible devant la relaxation non radiative vers l'état brillant. Adapté de [87].

L'énergie d'émission des CNT est globalement déterminée par leur chiralité mais leurs mécanismes d'absorption et de photoluminescence sont largement dominés par les effets excitoniques. La force d'oscillateur des CNT se concentre d'ailleurs principalement sur la transition S_{11} c'est-à-dire l'exciton brillant de plus basse énergie. Pour observer cette photoluminescence dans les bandes télécoms sur des nanostructures individuelles, les CNT doivent être synthétisés et séparés avec un soin particulier comme détaillé dans la partie suivante.

1.2 Préparation et caractérisation des échantillons

Les échantillons utilisés dans cette thèse sont des CNT dopés ou non et dispersés dans une matrice de polystyrène de 100 nm d'épaisseur. Un tel échantillon est l'aboutissement de plusieurs étapes comprenant la synthèse des CNT, leur dispersion en solution et leur dépôt sur substrat. Ces étapes sont détaillées dans la partie 1.2.1. Une pré-caractérisation est aussi réalisée pour confirmer la qualité du dépôt et sa densité (voir annexe A.1). Ensuite, les échantillons sont étudiés en micro-photoluminescence grâce au dispositif présenté partie 1.2.2. Pour interpréter leurs spectres, quelques notions supplémentaires sur la photoluminescence des CNT sont introduites. Par exemple, les phénomènes de couplage aux phonons acoustiques et de diffusion spectrale y sont expliqués.

1.2.1 Production de nanotubes de carbone individuels

Les nanotubes de carbone sont des structures auto-assemblées très faciles à produire et se trouvent dans les résidus de combustion de matériaux carbonés. Néanmoins, pour favoriser la formation de nanotubes mono-paroi propices à la photoluminescence, certaines techniques de synthèse sont privilégiées. Une fois les CNT produits, il sont séparés les uns des autres pour les mettre en suspension. Une étape est éventuellement ajoutée pour doper chimiquement les CNT.

1.2.1.1 Synthèse

Historiquement, les nanotubes de carbone étudiés par Iijima en 1991 [10] étaient obtenus par arc électrique sur des électrodes de graphite. Il s'agit de la technique utilisée à l'époque pour produire des fullerènes. Cependant, les nanotubes produits ainsi présentaient un grand nombre de défauts cristallins, étaient couverts d'impuretés et extrêmement dispersés en diamètre. Or, les propriétés des nanotubes de carbone sont déterminées par leurs chiralités qui fixent leurs diamètres. Pour fabriquer un échantillon ayant des propriétés homogènes, il s'agit de limiter le nombre de chiralités représentées. En travaillant dans ce sens et pour minimiser la formation de carbone amorphe (l'impureté majoritaire), la synthèse par arc électrique a été optimisée et deux autres techniques ont vu le jour : le dépôt chimique en phase vapeur (*Chemical Vapor Deposition*, CVD) et la synthèse par ablation laser.

Bien que très peu coûteuse, la synthèse par arc électrique donne très peu de maîtrise sur la chiralité. La synthèse par ablation laser est un peu plus spécifique et produit des nanotubes d'excellente qualité cristalline. Toutefois, c'est une technique difficile à mettre en place et à optimiser, qui n'est pas industrialisable. Enfin, la synthèse par CVD est celle qui donne le plus de contrôle sur la croissance des CNT. Elle donne accès aux nanotubes de plus petits diamètres [88] et permet de faire croître des nanotubes suspendus. Cette synthèse se déroule à plus faible température que les deux autres, les défauts cristallins et les impuretés sont plus fréquents. Pour l'instant, aucune synthèse n'est mono-chirale et, mis à part les nanotubes suspendus, les CNT doivent toujours être séparés et purifiés avant d'étudier leur propriétés optiques.

Au cours de cette thèse, deux types de nanotubes de carbone ont été étudiés :

1. Des CNT synthétisés par ablation laser par Oliver Jost à l'université technologique de Dresde puis purifiés dans l'équipe de Stéphane Campidelli au CEA/Saclay.
2. Des CNT synthétisés par CVD industriellement par SigmaAldrich (SG65i) qui ont été soit purifiés dans l'équipe de Jana Zaumseil à l'université de Heidelberg, soit purifiés puis dopés dans l'équipe de Stephen Doorn au Laboratoire National de Los Alamos.

Ces deux techniques de synthèse sont résumées ci-dessous. Elles reposent toutes les deux sur la mise en présence d'une source carbonée et de catalyseurs métalliques à une température en général supérieure à 700 °C.

Dans le cas de l'ablation laser, un laser YAG est focalisé sur une cible de graphite contenant des particules métalliques dans une atmosphère d'argon. Les CNT croissent sur un condenseur à la sortie du four. Plus la puissance de l'impact laser est importante plus le diamètre des nanotubes formés est petit. Pour les CNT utilisés, il reste en général de l'ordre de 1,1 nm [89]. De cette façon, il est possible de créer 1,5 g/h de CNT [50].

La CVD est la technique la plus couramment utilisée pour synthétiser des CNT et il existe de nombreux protocoles différents.

Dans le cas des CNT SigmaAldrich utilisés, le protocole breveté est appelé CoMoCAT pour CATalyseur Cobalt/Molybdène. Un flux de CO entre 1 et 10 atm est envoyé sur ce catalyseur de 700 à 950 °C. De cette manière, il est possible de créer 0,25 g/h de CNT mono-paroi par gramme de catalyseur. Ces nanotubes ont un diamètre de l'ordre de 0,7 nm et les chiralités les plus représentées sont les (6,5) et les (7,5).

En déposant un catalyseur au bord d'une encoche, il est possible de faire croître des nanotubes suspendus sur une courte distance [90]. Cette technique est intéressante car elle permet d'étudier des nanotubes isolés directement issus de la croissance. Cependant, ils sont particulièrement fragiles et ont tendance à vibrer. De plus, les chances de faire croître un nanotube semiconducteur, monoparoi et émettant dans les bandes télécoms sur une distance de quelques micromètres⁴ sont encore trop faibles pour être exploités dans le cadre de cette thèse.

Ainsi, en sortie de croissance, une poudre noire est récupérée. Elle contient à la fois les CNT désirés agrégés avec d'autres chiralités, des impuretés comme le carbone amorphe et les particules métalliques de catalyse. Il faut donc isoler les CNT avant de réaliser des échantillons.

1.2.1.2 Dispersion, sélection et dopage

Pour isoler les nanotubes les uns des autres et les séparer des impuretés, il est possible d'introduire en milieu liquide un surfactant chiral très sélectif comme les polyfluorènes qui peuvent s'enrouler autour de nanotubes de chiralité spécifique [16, 91]. Chaque type de polyfluorène est adapté à une gamme de diamètres de CNT précise : le PFO-BPy permet d'isoler des diamètres de l'ordre de 0,7 nm et le PFH-A des diamètres de l'ordre de 1,1 nm [92]. Toutefois, les nanotubes sont agrégés entre eux sous forme de faisceaux comme sur la figure 1.12 par des liaisons de Van der Waals. Or, l'énergie de liaison entre deux nanotubes est comparable à l'énergie d'une liaison covalente au sein d'un nanotube. Ils doivent donc subir un traitement violent (pointe à ultrasons par exemple) pour que le surfactant puisse s'introduire entre leurs

4. Le nanotube devrait être suspendu sur près de 10 µm pour être adapté à la micro-cavité fibrée décrite dans le chapitre 3.

1.2. PRÉPARATION ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS

parois. Ce traitement a donc aussi pour effet de créer des défauts et de casser les nanotubes de carbone en les réduisant à une taille de l'ordre de quelques centaines de nanomètres de long. Pour minimiser ces effets secondaires, des techniques plus douces sont employées comme un bain à ultrasons au CEA/Saclay dans l'équipe de Stéphane Campidelli ou des forces de cisaillement à l'université de Heidelberg dans l'équipe de Jana Zaumseil. Les nanotubes sont ensuite prélevés dans le surnageant d'une solution après ultracentrifugation. Après cette étape, il est même possible d'utiliser le gradient de masse volumique pour trier les différentes chiralités [93]. Elle est cruciale pour la qualité de la photoluminescence car les impuretés métalliques et les agrégats sont des sources de recombinaison non-radiatives et de photoblanchiment.

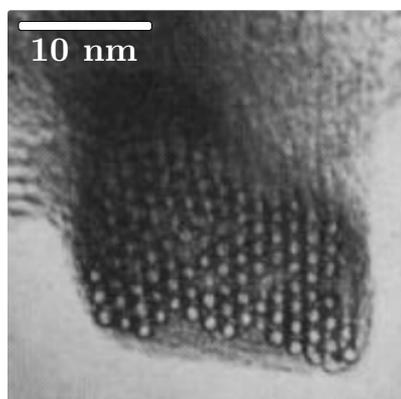


FIGURE 1.12 – Faisceau de CNT alignés observés en coupe transversale au microscope électronique en transmission. Tiré de [94].

Grâce à ce protocole, une solution de nanotubes CoMoCAT contenant originellement 41% de CNT (6,5) peut être enrichie pour atteindre 96% [95]. Les nanotubes fournis par l'équipe de Stéphane Campidelli ($d_{NT} \approx 1,1$ nm, entre autres des (9,7) et des (10,8)) sont revêtus de PFH-A et séparés de cette manière.

Cependant, la centrifugeuse parvenant aux 150000g nécessaires à la séparation des CNT représente un lourd investissement et seulement une faible quantité de CNT peut être traitée à chaque étape. Pour s'en affranchir, d'autres protocoles de séparation plus simples ont récemment été développés [14, 15]. Ils reposent sur la redistribution spontanée des CNT entre deux phases aqueuses différemment hydrophobes (ATP, *Aqueous Two-Phase*). Certaines chiralités sont séparées avec une bonne pureté en seulement deux étapes (voir figure 1.13) en utilisant une centrifugation de 700g. Les impuretés et autres chiralités restent piégées à l'interface entre les deux phases. Les nanotubes fournis par l'équipe de Stephen Doorn ont été purifiés de cette façon.

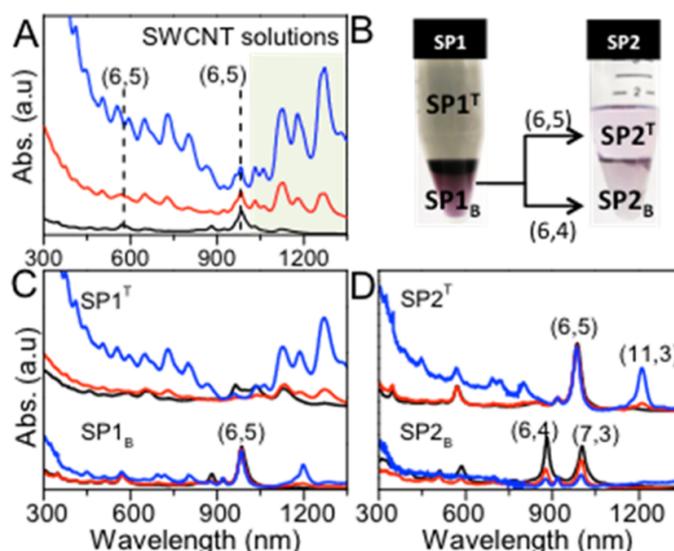


FIGURE 1.13 – (A) Spectres d’absorption d’ensemble de CNT commerciaux en solution. La courbe noire provient de CNT CoMoCAT SG65i et les courbes rouge et bleu d’autres CNT (HiPco). L’emplacement des pics d’absorption caractéristiques des (6,5) est indiqué par des pointillés. (B) Photographies des deux microtubes Eppendorf prises lors des deux étapes (SP1 et SP2) du protocole ATP pour des CNT CoMoCAT SG65i. Lors de l’étape SP2, la phase SP1_B est séparée entre les phases SP2^T et SP2_B et les impuretés stockées à leur interface. (C,D) Spectres d’absorption d’ensemble des différentes phases SP1^T, SP1_B, SP2^T et SP2_B. La phase SP1_B est enrichie en (6,5) par rapport à la solution initiale et la phase SP2^T par rapport à la SP1_B. Tiré de [15].

Une fois purifiés, les CNT peuvent être dopés. Le protocole utilisé pour les CNT de cette thèse est de mettre en contact les CNT avec une solution aqueuse de sel de diazonium (ici le 3,5-dichlorobenzène diazonium). La concentration en sel et la durée d’exposition sont choisies pour créer statistiquement moins d’un défaut par CNT [96]. La réaction est ensuite stoppée en ajoutant une solution de désoxycholate de sodium. Ce dopage produit au plus quelques $\mu\text{g}/\text{mL}$ et il est difficile de le généraliser à grande échelle. Toutefois, un protocole très innovant paru cette année permet de réaliser ce dopage directement sur une grande quantité de nanotubes bruts en une étape [97]. Il consiste à dissoudre des CNT dans une solution d’acide chlorosulfurique contenant du nitrite de sodium et les dérivés d’aniline désirés comme dopant (voir figure 1.14). Les CNT peuvent être directement séparés par ATP une fois neutralisés. Une seule étape produit ainsi plusieurs centaines de milligrammes de CNT dopés.

1.2. PRÉPARATION ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS

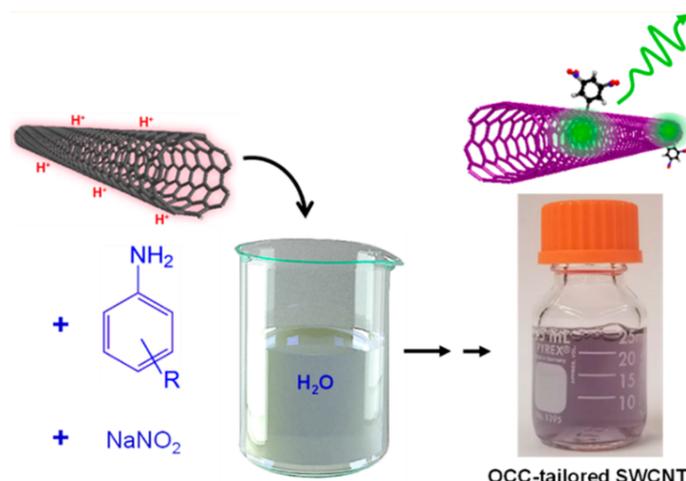


FIGURE 1.14 – Les nanotubes bruts, extrêmement hydrophobes non revêtus de surfactant, peuvent malgré tout être dissous dans une solution aqueuse en présence d'un superacide (ici l'acide chlorosulfurique). En ajoutant du nitrite de sodium et le dérivé d'aniline désiré à la solution acidifiée, les CNT sont dopés in situ. Pour les isoler, il suffit de neutraliser la solution, de la filtrer et de procéder à une séparation par ATP. Tiré de [97].

Après avoir été purifiés et éventuellement dopés, les CNT sont déposés sur un substrat avec une densité adaptée à l'étude de nanostructures uniques.

1.2.1.3 Dépôts

Contrairement à la synthèse, à la purification et au dopage des CNT, le dépôt des CNT sur substrat est réalisé sur place, en salle blanche. Un certain nombre de critères doivent être pris en compte pour le réaliser :

- La densité des CNT une fois déposés doit être suffisamment faible pour pouvoir étudier des nanostructures uniques et suffisamment élevée pour pouvoir repérer la photoluminescence d'un CNT relativement rapidement (voir partie 1.2.2.1). Cela correspond à une densité de l'ordre de 1 CNT pour 40 μm^2 .
- Le dépôt ne doit pas apporter de nouvelles impuretés pour ne pas dégrader la qualité d'émission des CNT (voir partie 1.2.2.3).
- La qualité de surface de l'échantillon est cruciale pour le bon déroulement des expériences de CQED (voir partie 3.2.3.2). Le dépôt doit présenter une rugosité minimale.

Dans le cadre de cette thèse, les CNT sont dispersés dans du toluène⁵ et les substrats sont les miroirs diélectriques décrits partie 3.2.2.2. Les dépôts sont très dépendants

5. Ce solvant dissout la plupart des plastiques donc tous les ustensiles utilisés (pipette, pinces, supports) sont soit en verre soit en céramique.

de la matière du substrat et de sa qualité de surface. La dernière couche des miroirs diélectriques étant en silice, le protocole de dépôt est d'abord optimisé sur des lames de silice standard puis, de quartz fondu (Quartz QX25 Hellma) lorsque la photoluminescence à basse température est testée⁶.

Deux techniques sont principalement employées :

- La *tournette* (ou *spin coating*) : Aussi appelée enduction centrifuge, cette technique consiste à déposer quelques gouttes de solution sur le substrat fixé par aspiration à un plateau tournant. La solution s'étale de façon uniforme sur le substrat par force centrifuge et la vitesse de rotation du plateau est maintenue constante (3000 tours/s) jusqu'à séchage complet.
- La *soufflette* : Quelques gouttes de solution sont laissées en contact avec le substrat pendant une durée comprise entre 20 et 40 secondes puis sont chassées par de l'air comprimé.

En pratique, la méthode par tournette est en général plus reproductible mais ne fonctionne qu'avec des fluides légèrement visqueux. Pour atteindre une densité suffisante à partir d'une solution de CNT en suspension dans du toluène pur, la méthode par soufflette est privilégiée.

Étant donné que les CNT ne sont formés que d'atomes de surface, ils sont particulièrement sensibles à leur environnement (voir partie 1.1.2.2). Pour obtenir une plus grande stabilité d'émission, il est donc bénéfique de figer les fluctuations de cet environnement en déposant les CNT dans une matrice. Jusqu'à présent, les meilleures qualités d'émission en matrice proviennent de CNT protégés par du polystyrène [98, 96, 99]. L'ajout de polystyrène rend la solution suffisamment visqueuse pour être déposée à la tournette. Sauf mention contraire, les échantillons exploités dans cette thèse sont des CNT déposés dans environ 100 nm de polystyrène. L'épaisseur est vérifiée à l'aide d'un profleur à stylet Dektak.

Les suspensions de CNT ont tendance à changer de concentration au bout de quelques mois. Ce phénomène est peu prévisible car il provient de deux effets contraires : l'agglomération des CNT qui dilue la solution et l'évaporation du toluène qui la concentre. Il faut donc calibrer la concentration en CNT lors de chaque nouveau dépôt. Pour cela une caractérisation préliminaire des échantillons par microscopie à force atomique (AFM) et/ou en microspectroscopie Raman est menée (voir annexe A.1).

1.2.2 Photoluminescence

Cette partie présente à la fois le dispositif de micro-photoluminescence mis en place durant cette thèse et les caractéristiques des spectres de photoluminescence des CNT. Le dispositif expérimental est résumé succinctement partie 1.2.2.1 puis, des

6. Certaines impuretés des lames de silices standards présentent un signal de photoluminescence à basse température et pollue celui émis par les CNT.

1.2. PRÉPARATION ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS

spectres typiques de CNT à températures ambiante et cryogénique sont commentés partie 1.2.2.2. À basse température, ces spectres ont la particularité de révéler une raie centrale particulièrement fine. Cependant, les fluctuations de l'environnement causent une diffusion spectrale qui élargit l'émission. Ce problème peut être minimisé en agissant directement sur l'environnement ou sur l'excitation lumineuse comme détaillé partie 1.2.2.3.

1.2.2.1 Dispositif de micro-photoluminescence

Le dispositif de micro-photoluminescence (PL) installé durant ma thèse est décrit dans la figure 1.15.

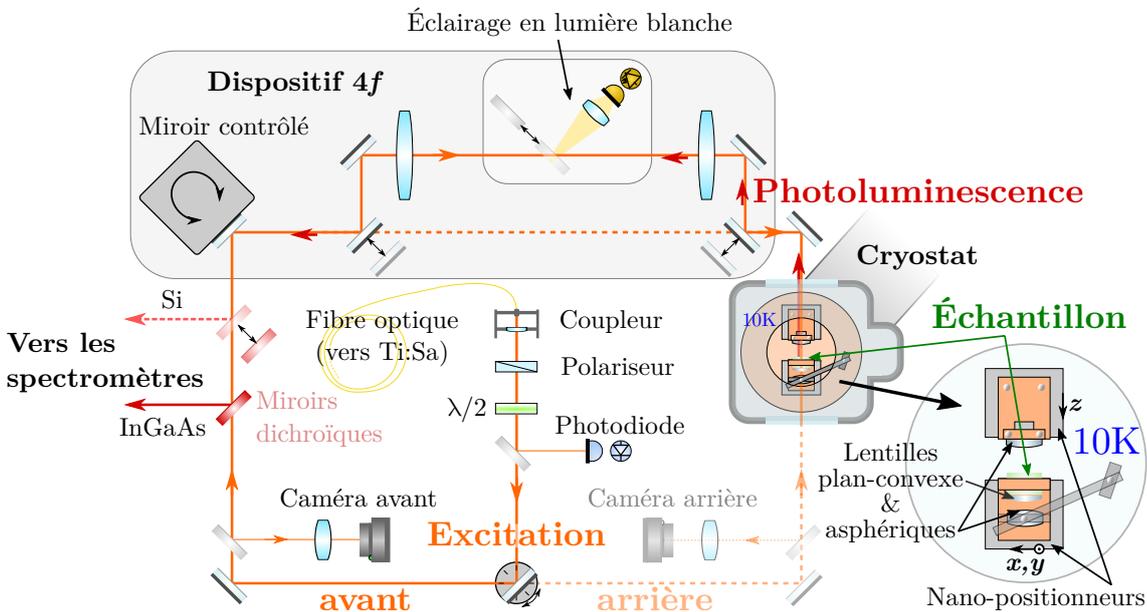


FIGURE 1.15 – Schéma du dispositif de micro-photoluminescence.

L'échantillon est excité hors résonance par un laser Titane :Saphir SolsTiS Msquared (lignes orange sur le schéma) apporté par une fibre optique monomode. Ce laser est stabilisé en fréquence et accordable entre 700 et 1002 nm. En général sa longueur d'onde est fixée entre 850 et 870 nm pour correspondre à l'absorption X_2 à 200 meV de la transition S_{11} (voir partie 1.1.2.2). Sa polarisation est ajustable grâce à un polariseur Glan-Thompson et une lame $\lambda/2$ et son intensité est stabilisée (voir annexe D.2.4). Il est focalisé par une lentille asphérique C330TMD-C Thorlabs de focale 3,1 mm et de 0,7 d'ouverture numérique directement sur la surface de l'échantillon (excitation par l'avant). Il peut être aussi focalisé à travers la face arrière du substrat (excitation arrière) par une lentille asphérique et une lentille plan-convexe compensant l'épaisseur de 6,35 mm du substrat (lentilles asphérique amsTechnologies 354120C et plan-convexe 67-457 Edmund Optics). L'excitation arrière paraît accessoire ici mais elle est cruciale pour les expériences de CQED détaillées dans le chapitre 5.

L'échantillon est placé dans l'enceinte d'un réfrigérateur à tube pulsé⁷. Sauf mention contraire, le doigt froid auquel est relié l'échantillon descend jusqu'à 20 K. Grâce à un éclairage amovible en lumière blanche, sa surface est imagée en réflexion (caméra avant) et en transmission (caméra arrière) comme sur la figure 1.16. Pour permettre les expériences de CQED, le substrat ne comporte pas de marqueurs comme ceux visibles figure 1.16. Il reste néanmoins possible de se repérer en se fiant aux quelques impuretés déposées sur l'échantillon. Ces caméras permettent aussi un alignement plus rapide du dispositif.

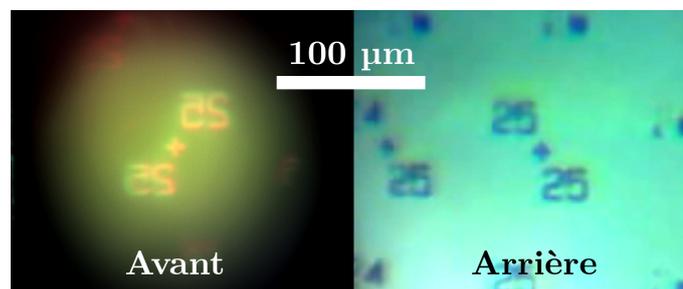


FIGURE 1.16 – Visualisation de marqueurs en aluminium déposés sur un substrat de silice par les caméras avant et arrière. Ces marqueurs ont été utilisés pour une caractérisation du dispositif figure 1.15 et ne sont pas présents lors des expériences de CQED. Il reste en général possible de se repérer sur l'échantillon en s'orientant grâce à quelques impuretés.

La photoluminescence du CNT excité (lignes rouge foncé) est collectée via le même chemin optique que l'excitation. Elle est ensuite envoyée vers un spectromètre adapté à sa longueur d'onde grâce à un miroir dichroïque. Le dispositif est conçu pour l'étude de CNT émettant entre le visible et la bande télécoms C (650 à 1550 nm) et comporte deux spectromètres : l'un associé à une caméra CCD silicium (350 à 1050 nm) et l'autre à une caméra CCD InGaAs NIRvana:640LN Princeton Instruments associée au spectromètre IsoPlane SCT 320 (850 à 1550 nm). Puisque, dans cette thèse, seuls les résultats concernant des échantillons émettant dans les bandes télécoms sont présentés, la description du dispositif se limitera à la gamme de longueur d'onde 1250 à 1550 nm. Le spectromètre associé à la caméra InGaAS comprend deux réseaux de 150 et 900 traits/mm qui donnent une résolution de 0,3 nm et 0,08 nm (resp. 200 µeV et 60 µeV à 1310 nm). Le rendement de l'ensemble caméra, spectromètre, lentille d'entrée et filtre passe-haut en longueur d'onde FEL1000 Thorlabs a été mesuré à 1310 nm et vaut 6,2% pour le réseau 150 traits/mm et 5,8% pour le 900 traits/mm (soit environ 16 et 17 photons/coups). Ce rendement expérimental atteint 78% du rendement maximum prenant en compte des réseaux idéaux, la conversion analogique numérique de la camera, son rendement quantique et les revêtements des miroirs et de la lentille.

Pour explorer différentes zones de l'échantillon, plusieurs moyens sont possibles :

7. Modèle personnalisé Cryostation Montana Instruments.

1.2. PRÉPARATION ET CARACTÉRISATION DES ÉCHANTILLONS

- La position de l'échantillon est ajustable grâce à deux nano-positionneurs inertiels ANPx51/RES et ANPz51/RES Attocube de 2,5 mm de course sur les directions \mathbf{x} et \mathbf{y} sur le schéma. Un troisième nano-positionneur du même type permet d'optimiser la focale de la lentille asphérique avant (direction \mathbf{z} sur le schéma).
- L'excitation avant et la collection peuvent être déplacées grâce à un miroir contrôlé FSM 300-01 Newport selon deux axes de $1,5^\circ$ de course associé à deux lentilles de focale f en configuration afocale. Cet ensemble, appelé dispositif $4f$ sur le schéma 1.15, permet de déplacer simultanément l'excitation avant et la collection. Son fonctionnement est rappelé dans l'annexe A.2.

La course maximale du miroir contrôlé équivaut à un déplacement d'environ $160 \mu\text{m}$. Un balayage typique réalisé avec le miroir couvre environ $260 \mu\text{m}^2$ avec une résolution de $0,8 \mu\text{m}$ (soit 400 points) inférieure à la taille de la tache de collection. Cela couvre en moyenne 7 CNT pour une densité d'échantillon standard.

La densité de CNT dans l'échantillon est en général suffisamment faible pour qu'un filtrage spatial de microscopie confocale ne soit pas nécessaire.

1.2.2.2 Spectre typique

La photoluminescence des CNT à température ambiante se présente sous la forme d'un pic assez large ($\sim 50 \text{ meV}$) correspondant à la transition S_{11} ou à la transition S_{11}^* pour les défauts chimiques. Un exemple de spectre typique est donné figure 1.17a. Contrairement aux nanocristaux colloïdaux par exemple (voir partie 1.3.2), leur émission est très stable. La figure 1.17b représente une trace de l'intensité en fonction du temps : les fluctuations de l'intensité σ_{QE} (*Quantum Emitter*) sont proches de celles d'un bruit de grenaille σ_{SN} (*Shot Noise*). En pratique, le paramètre Q_M de Mandel est défini comme $Q_M \equiv \frac{\langle N^2 - \langle N \rangle^2 \rangle}{\langle N \rangle} = \left(\frac{\sigma_{\text{QE}}}{\sigma_{\text{SN}}} \right)^2$ où N est le nombre de coups de photoluminescence pour 100 ms. Pour comparaison, dans le cas d'émetteurs scintillants ou en train de photoblanchir Q_M tend vers $\langle N \rangle$.

En ordre de grandeur Q_M est de l'ordre de plusieurs milliers pour les nanocristaux colloïdaux [100] et, dans le meilleur des cas, inférieur à l'unité pour des molécules uniques [101]. Dans cette thèse, il reste inférieur à la dizaine pour les CNT étudiés en matrice de polystyrène. [32, 99]

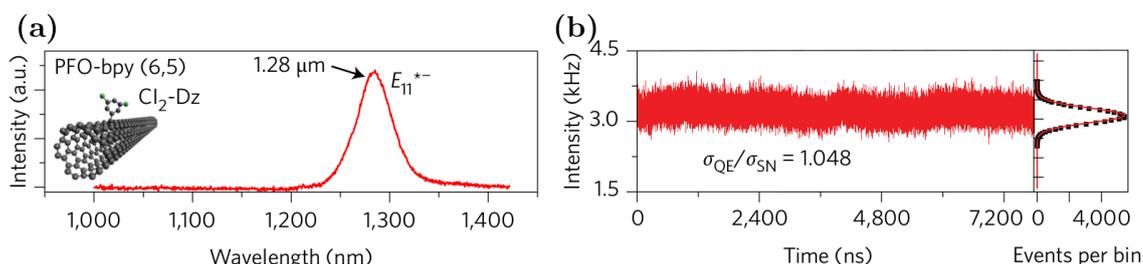


FIGURE 1.17 – Comportement de CNT (6,5) fonctionnalisés et déposés sur un substrat revêtu de polystyrène. **(a)** Spectre de photoluminescence. **(b)** Trace temporelle (100 ms par point) avec la valeur de σ_{QE}/σ_{SN} correspondante. Tiré de [32].

L'émission est large car l'exciton piégé interagit avec le bain de phonons du CNT (principalement avec les phonons acoustiques). Cette situation est modélisée par deux niveaux (existence ou non d'un exciton) habillés par des niveaux vibrationnels comme sur la figure 1.18. Cela donne lieu à différents mécanismes d'émission :

- L'émission n'implique aucun phonon, cette émission correspond directement à la transition S_{11} (ou S_{11}^*). Cette raie de photoluminescence est appelée raie à zéro phonons (ZPL pour *Zero-Phonon Line*). Elle définit la longueur d'onde centrale et est représentée en vert sur le schéma.
- L'émission implique la création d'un phonon, le photon émis est de longueur d'onde plus grande que pour la ZPL. Ce phénomène élargit l'émission du côté « rouge » en créant une aile de phonon (PSB pour *Phonon Side Band*).
- L'émission implique la destruction d'un phonon, le photon émis est de longueur d'onde plus courte que pour la ZPL. Cette PSB bleue est symétrique en position (pas en intensité) de la PSB rouge par rapport à la ZPL.

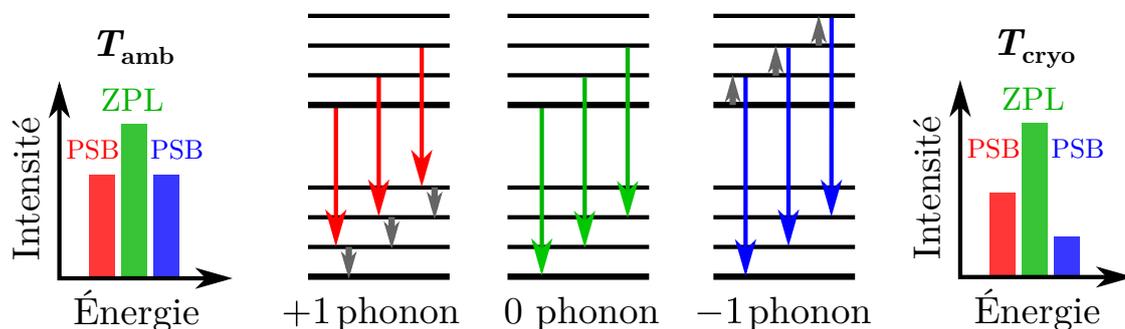


FIGURE 1.18 – **Au centre** : Système à deux niveaux habillés par des états vibrationnels. Trois mécanismes d'émission radiative impliquant respectivement (à gauche, en rouge) la création, (au centre, en vert) aucun et (à droite, en bleu) l'annihilation d'un phonon. **Sur les côtés** : Schémas des spectres de photoluminescence à températures ambiante T_{amb} et cryogénique T_{cryo} .

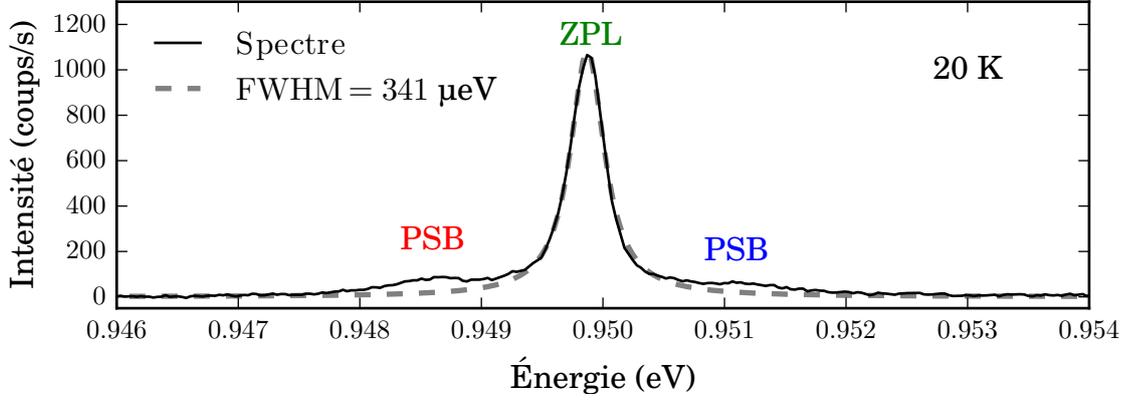


FIGURE 1.19 – Spectre typique à température cryogénique d’un CNT dopé enveloppé de PFO-BPy en matrice de PS. Sa largeur à mi-hauteur (FWHM) est de 341 μeV d’après un ajustement lorentzien de la ZPL (pointillés gris).

À température cryogénique, le nombre de phonons présents dans la structure est réduit. Cela a pour effet de diminuer l’amplitude des PSB et d’affiner le spectre d’émission. En outre, l’absorption de phonons devient peu probable alors qu’il reste facile d’en émettre. Cela se manifeste par une asymétrie du spectre : la PSB bleue est moins intense que la rouge. Un spectre typique de CNT à température cryogénique est donné figure 1.19. La ZPL est bien identifiable sur le spectre et sa largeur à mi-hauteur (FWHM pour *Full Width at Half Maximum*) est obtenue par un ajustement lorentzien. Le facteur de qualité de l’émetteur $Q_{\text{ém}}$ est défini par le rapport de son énergie d’émission sur la FWHM. Dans le cas du spectre figure 1.19, il vaut $Q_{\text{ém}} \approx 2800$. Le meilleur facteur de qualité mesuré dans cette thèse vaut $Q_{\text{ém}} \approx 5900$ pour une FWHM d’environ 160 μeV .

Le rapport de l’intensité de la PSB bleue sur celle de la rouge est liée à la population des états vibrationnels. Il provient donc de la répartition de Bose-Einstein des phonons : $f_{\text{BE}}(\omega_{\text{ph}}) = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_{\text{ph}}}{k_{\text{B}}T}\right) - 1}$ où $\hbar\omega_{\text{ph}}$ est l’énergie des phonons. Ainsi, en notant I l’intensité du spectre et en prenant la ZPL pour origine des énergies, le rapport des intensités des PSB vaut :

$$\frac{I(\omega_{\text{ph}})}{I(-\omega_{\text{ph}})} = \frac{f_{\text{BE}}(\omega_{\text{ph}})}{f_{\text{BE}}(\omega_{\text{ph}}) + 1} = \exp\left(-\frac{\hbar\omega_{\text{ph}}}{k_{\text{B}}T}\right) \quad (1.18)$$

Ce rapport fournit une estimation de la température de l’émetteur. Un exemple de deux spectres de CNT pris à deux températures différentes et de l’estimation de la température est donné figure 1.20.

En ordre de grandeur, un écart de photoluminescence de 20% entre les PSB rouge et bleue pour un phonon d’énergie de 1 meV correspond à une température de 60 K.

Les températures locales estimées au niveau de l’émetteur sont très supérieures à

celles mesurées sur le doigt froid du cryostat (29 K au lieu de 12 K et 77 K au lieu de 53 K). Cela résulte à la fois d'une surestimation car le modèle ne prend pas en compte la largeur des raies et d'un effet réel : l'échauffement de la nanostructure par l'excitation laser.

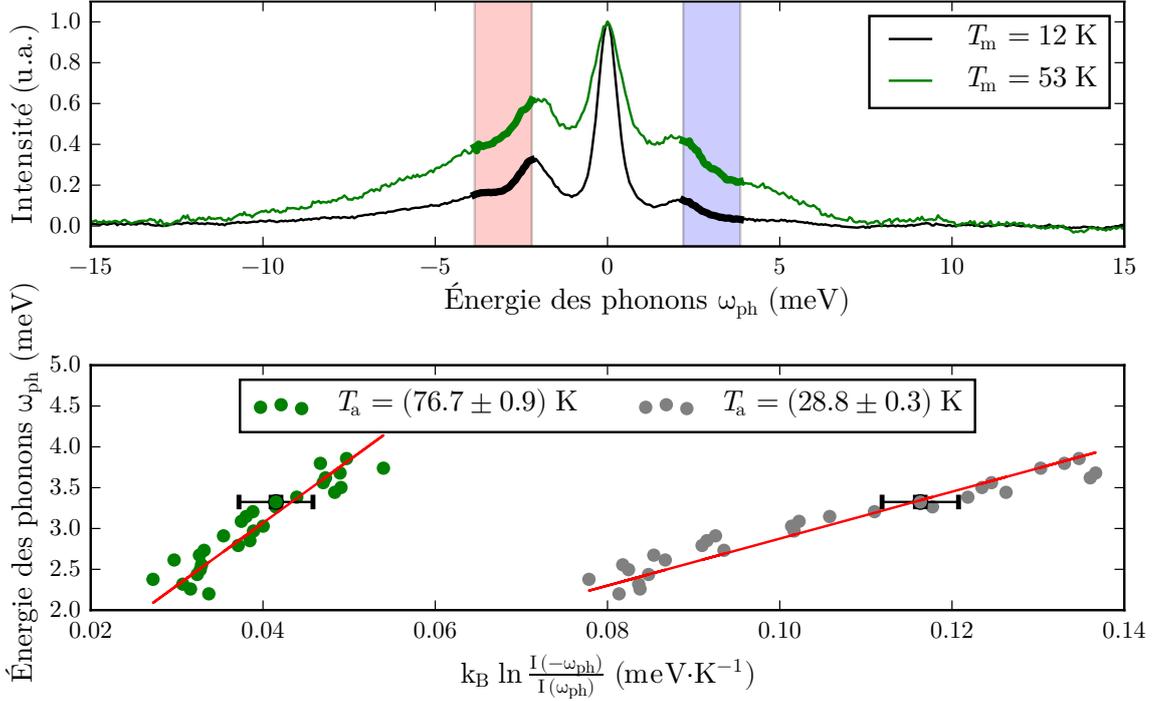


FIGURE 1.20 – **En haut** : Deux spectres normalisés provenant d'un même émetteur (CNT CoMoCAT enveloppé de PFO-BPy) pour deux températures du doigt froid différentes (12 K et 53 K). **En bas** : Logarithme du rapport de l'intensité de photoluminescence de l'aile rouge sur l'aile bleue (colorées sur le graphique du haut) en fonction de l'écart à la ZPL ω_{ph} . Les températures T_a sont calculées à partir des ajustements linéaires (droites rouges).

Ce modèle reste très rudimentaire et n'explique en rien les creux spectraux entre la ZPL et les bandes de phonons. Une explication plus construite de la forme des spectres et de leur dépendance avec la température fait l'objet de l'annexe A.3. Cependant, cette première approche permet une estimation correcte du facteur de qualité d'émission. En moyenne, l'émission des CNT présentant des défauts non intentionnels est moins stable et plus large que celle des CNT dopés.

Sur une centaine de CNT non dopés, aucun facteur de qualité supérieur à 2500 n'a été mesuré (voir figure 1.22b) tandis que sur une trentaine de CNT dopés, la grande majorité avait un facteur de qualité supérieur à 2500. Pour cette raison, la plupart des résultats présentés dans cette thèse proviennent de l'émission de CNT dopés.

L'émission des CNT est non seulement sensible à la déformation du réseau

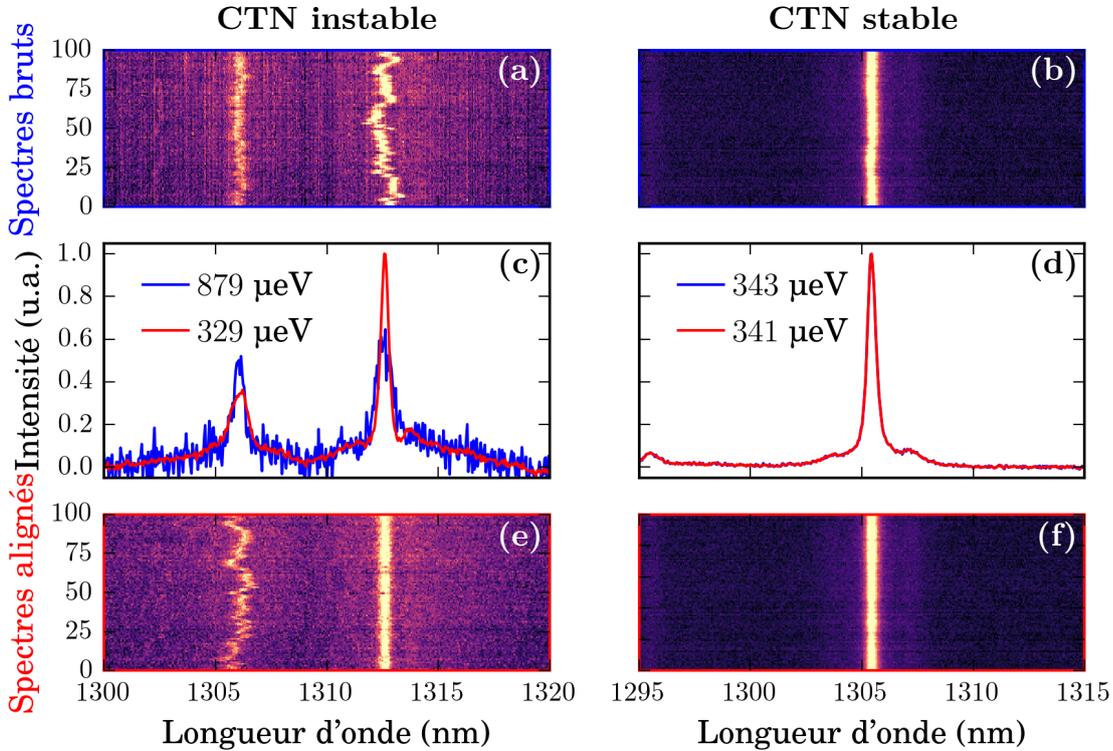


FIGURE 1.21 – (a,b) : Deux exemples de traces temporelles pour deux CNT différents : 100 spectres de 1 s d’exposition acquis d’affilée. Pour le CNT instable (trace a), un deuxième signal d’émission moins intense est visible à plus basse longueur d’onde, il s’agit d’un autre émetteur distant de quelques μm du CNT observé. (e,f) : Les 100 spectres sont réalignés par rapport à la longueur d’onde de la ZPL. (c,d) : Moyennes des spectres bruts (en bleu) et des spectres réalignés (en rouge). Des ajustements lorentziens non tracés donnent les FWHM des émissions indiquées sur les graphiques.

crystallin due aux phonons mais aussi aux fluctuations électrostatiques. La partie suivante aborde les précautions à prendre pour éviter un élargissement trop important de l’émission à cause de ces fluctuations.

1.2.2.3 Influence de l’environnement électrostatique

Comme sur la trace temporelle figure 1.21a, l’énergie d’émission du CNT peut subir des fluctuations du même ordre de grandeur voire plus importantes que sa largeur intrinsèque à différentes échelles de temps. Ce phénomène est appelé diffusion spectrale. Ces fluctuations peuvent être dues à des changements survenus dans l’environnement local de la nanostructure : par exemple l’apparition d’une charge photo-induite [102] ou l’adsorption/désorption d’une particule. Il est possible d’interpréter le décalage de la raie d’émission comme un effet Stark [103].

La diffusion spectrale rend les spectres dépendant du temps d'exposition (plus la raie a le temps de diffuser, plus elle est élargie sur le spectre). En effet, si un moyennage direct est effectué lors de l'acquisition, la largeur de l'émetteur sera surestimée comme pour les courbes bleues dans la figure 1.21. Ce phénomène limite la durée d'intégration et donc le rapport signal sur bruit des spectres. Étant donné que les PSB et la ZPL subissent la diffusion spectrale en bloc [104], il est possible de limiter cet effet en prenant de nombreuses acquisitions courtes au lieu d'une longue et de recentrer numériquement les signaux avant de les moyenner (courbes rouges dans la figure 1.21). Néanmoins, cette procédure ne compense que la diffusion spectrale ayant lieu à des temps plus longs que l'échantillonnage, de l'ordre de 1 s. Il est donc nécessaire de réduire la diffusion spectrale pour obtenir des émetteurs de grand facteur de qualité.

L'amplitude de la diffusion spectrale dépend de l'environnement du CNT [105, 102] et de l'intensité d'excitation laser [35]. Pour cette raison, l'environnement des CNT utilisés est stabilisé par une matrice de polystyrène et l'excitation est réduite à moins de 1 kW/cm^2 . En outre, l'effet bénéfique d'un recuit à pression ambiante sur les largeurs d'émission a été démontré sur des CNT sur substrat de silice [60]. Par extrapolation, les recuits des dépôts en matrice de PS réalisés dans cette thèse ont aussi été effectués à pression ambiante à plus de 100 °C pendant quelques minutes. Cela permet d'affiner significativement les largeurs d'émission (voir histogrammes figure 1.22). Toutefois, une étude récente montre que les recuits sont plus efficaces à pression réduite dans le cas des dépôts en matrice [99].

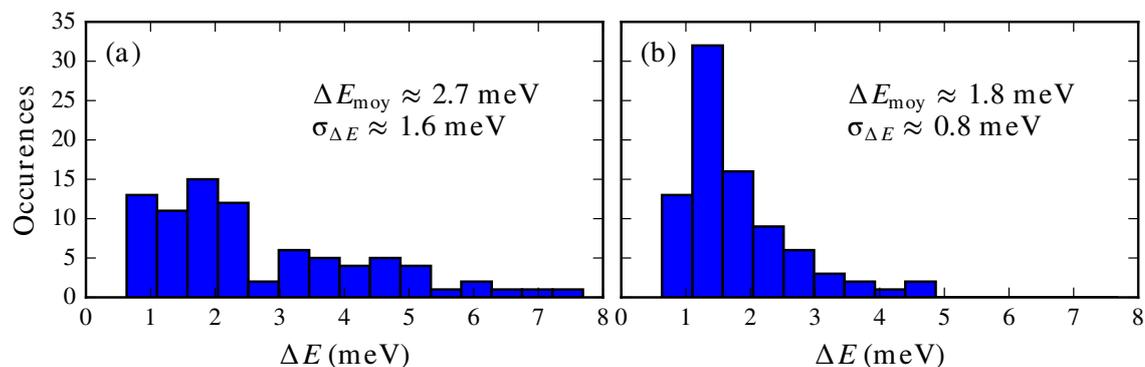


FIGURE 1.22 – Histogrammes de la largeur d'émission d'une centaine de CNT non dopés (a) avant et (b) après un recuit du dépôt. La moyenne $\Delta\lambda_{\text{moy}}$ et l'écart-type $\sigma_{\Delta\lambda}$ des FWHM sont plus faibles après recuit.

En protégeant des CNT dans une matrice de polystyrène et en veillant à optimiser la puissance et l'énergie d'excitation, des facteurs de qualité d'émission élevés ont pu être observés dans les bandes télécoms. Pour les CNT dopés aryle-diazonium, ces facteurs de qualité $Q_{\text{ém}}$ ont une moyenne d'environ 3000 pour un maximum de 6000.

Le profil original des spectres des CNT et leurs facteurs de qualités élevés malgré les ailes de phonons s'expliquent par le modèle développé dans l'annexe A.3. Ce dernier

repose sur la localisation de l'exciton au sein des CNT à température cryogénique. Cette localisation impliquerait un confinement supplémentaire de l'exciton dans l'axe du CNT et, donc une densité d'états électronique présentant des niveaux discrets. Cet exciton confiné recrée ainsi un système de matière condensée dont les propriétés d'émission sont comparables à un atome isolé. Ainsi, un CNT est une source de photons uniques comme décrite dans la partie suivante.

1.3 Émission de photons uniques

Une source de photons uniques émet des photons un par un. Une source classique (laser ou incandescence par exemple) ne devient pas une source de photons uniques une fois atténuée⁸, il y a toujours une grande probabilité que plusieurs photons soient émis en même temps. Pourtant obtenir une source de photons uniques constitue l'un des enjeux majeurs de l'optique quantique [106]. Il est possible d'obtenir ce type d'émission à partir d'une transition atomique. Il suffit d'exciter un système à deux niveaux puis d'attendre sa relaxation pour obtenir l'émission d'un seul photon. La manipulation d'atomes individuels étant d'une grande complexité, une alternative se trouve dans les émetteurs localisés au sein d'une nano-structure. Ces systèmes zéro-dimensionnels présentant des niveaux discrets d'énergie sont appelés atomes artificiels. Il peut s'agir de centres colorés comme les centres azote-lacune (centres NV) dans le diamant, de boîtes quantiques auto-assemblées ou bien d'excitons localisés comme pour les CNT.

La qualité d'un émetteur de photons uniques se définit principalement par sa probabilité d'émettre un photon à la fois, à la demande et de façon stable. En outre, un certain nombre d'expériences (les simulations quantiques ou l'échantillonnage de bosons par exemple) demandent que les photons émis soient indiscernables les uns des autres. Pour cela, il faut minimiser les causes de déphasage de la source ce qui revient à minimiser sa largeur d'émission. Pour d'autres applications comme la cryptographie quantique, ce n'est pas forcément nécessaire.

Suivant les conditions d'utilisation, la longueur d'onde d'émission de la source et sa température d'utilisation sont aussi cruciales. Des sources de photons uniques à température ambiante seraient préférables car la nécessité de moyens cryogéniques est un frein évident à l'implémentation d'une technologie. De plus, leur émission dans les bandes télécoms permettrait d'éviter d'amplifier un signal transmis dans des fibres optiques sur plusieurs dizaines de kilomètres. En effet, les répéteurs quantiques nécessaires pour amplifier de tels signaux représentent une grande difficulté expérimentale [107].

Dans les bandes de transmission télécoms (entre 1300 et 1600 nm), la norme [108] autorise des atténuations de 0,4 dB/km c'est-à-dire une atténuation d'un facteur 10

8. Il est possible d'atteindre une probabilité d'émettre plus d'un photon à la fois très faible. Cependant la faible brillance de ce type de source la rend inexploitable.

du signal après 25 km. Cela impose la mise en place de répéteurs tous les 100 km environ.

Cette partie présente la méthode expérimentale permettant de démontrer l'émission de photon unique puis un état de l'art des émetteurs uniques dans les bandes télécoms. Ensuite, les causes du dégroupement de photons dans les nanotubes sont exposées succinctement.

1.3.1 Expérience de Hanbury Brown et Twiss

Pour déterminer si une source émet des photons uniques, il est possible d'effectuer l'expérience de Hanbury Brown et Twiss. Cette expérience consiste à diviser en amplitude le faisceau issu de la source et de réaliser une corrélation en intensité en plaçant deux détecteurs de chaque côté de la séparatrice comme sur la figure 1.23. Les détecteurs doivent être sensibles à l'échelle du photon unique, ce sont en général des tubes photomultiplicateurs, des photodiodes à avalanche ou des nanofils supraconducteurs.

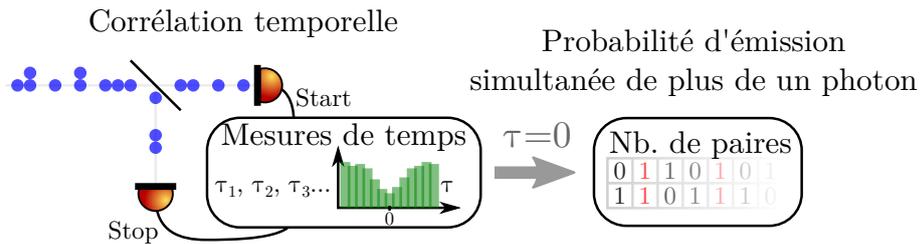


FIGURE 1.23 – Expérience Hanbury Brown et Twiss permettant de tracer la corrélation en intensité $g^{(2)}(\tau)$ d'une source. La probabilité d'émettre simultanément une paire de photons vaut $g^{(2)}(0)$.

En pratique, un détecteur déclenche une horloge (*Start*) et le second la coupe (*Stop*) un histogramme des délais τ obtenus est ensuite tracé pour un grand nombre d'événements. Cette mesure s'identifie à la corrélation d'intensité $g^{(2)}(\tau)$ une fois normalisée. La normalisation est telle que pour un délai suffisamment grand pour que les photons détectés soient décorrélés, $g^{(2)}(\tau) = 1$. Pour rappel, en notant I l'intensité, $g^{(2)}(\tau)$ est définie comme suit :

$$g^{(2)}(\tau) \equiv \frac{\langle I(t)I(t + \tau) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle} \quad (1.19)$$

Si l'horloge est déclenchée au même moment qu'elle est coupée cela signifie que deux photons ont été émis simultanément comme illustré à gauche de la figure 1.23. Ainsi, la valeur $g^{(2)}(0)$ donne la probabilité qu'une source émette deux photons en même temps. Pour une source de photons uniques $g^{(2)}(0) = 0$ et si l'intensité analysée provient de deux émetteurs uniques $g^{(2)}(0) = 50\%$, plus généralement, pour N émetteurs $g^{(2)}(0) = \frac{N-1}{N}$. Lorsque le temps de vie de l'émetteur est très court

1.3. ÉMISSION DE PHOTONS UNIQUES

devant le temps de relaxation des détecteurs, l'excitation de l'émetteur est choisie impulsionnelle. L'histogramme $g^{(2)}(\tau)$ est alors constitué de pics espacés de la durée entre deux impulsions comme sur la figure 1.28. $g^{(2)}(0)$ est calculé à partir du nombre de coups intégrés sur le pic à délai nul.

La corrélation $g^{(2)}(\tau)$ traduit la statistique d'émission des photons : pour une lampe à incandescence, ils sont plutôt groupés (*bunching*) tandis que pour un émetteur unique, ils sont dégroupés (*antibunching*). Le lien entre source, distribution statistique de photons et corrélation d'intensité est illustré figure 1.24

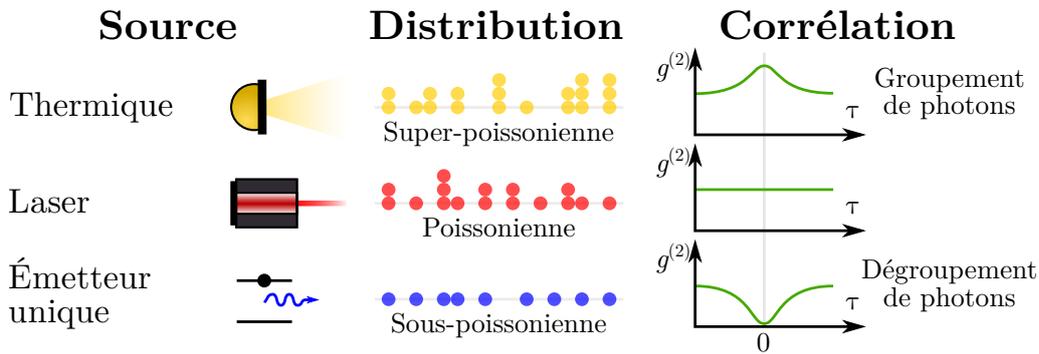


FIGURE 1.24 – Une lampe à incandescence aura tendance à émettre plusieurs photons en même temps alors qu'un émetteur unique en émet un à la fois. La source laser est un cas particulier émettant des photons suivant une statistique poissonnienne. Dans le cas d'une émission de photon dégroupée (resp. groupée), un minimum (resp. maximum) apparaît dans la corrélation d'intensité $g^{(2)}(\tau)$ à $\tau = 0$.

À l'exception des CNT, la plupart des Émetteurs de Photons Uniques (SPE) se situent dans le visible (centres NV et SiV du diamant, nanocristaux colloïdaux, défauts dans les matériaux 2D) ou dans le proche infrarouge à une longueur d'onde inférieure au micromètre (boîtes quantiques InAs/GaAs, nanocristaux colloïdaux). Pour adapter les photons émis aux bandes de transmission des fibres optiques, il est possible de bénéficier d'un phénomène d'optique non-linéaire. La conversion paramétrique descendante (*parametric down conversion*) transforme un photon de haute énergie en deux photons d'énergies plus basses dont un dans les bandes télécoms. Cependant, cela augmente drastiquement la difficulté de réalisation de la source de photon unique et cela peut altérer sa qualité d'émission [109]. L'efficacité des dispositifs de conversion paramétrique de photons uniques ne dépasse pas 30% actuellement [110, 111].

La conversion paramétrique est aussi utilisée directement sur un laser. Pour obtenir un dégroupement de photons, il est possible de tirer avantage de l'émission par paire : un des deux photons produits par conversion est détecté afin d'annoncer l'autre. Ce type de source est très répandu car il reste relativement simple à mettre en œuvre. Toutefois, son efficacité est limitée car sa probabilité d'émettre plus d'une paire de photons est toujours non nulle et croît avec la probabilité d'émettre une paire unique. Ainsi, pour minimiser l'émission de multi-paires, la probabilité d'émettre

une paire unique est plafonnée à environ 10% [9].

Pour une partie de ces émetteurs (boîtes quantiques et nanocristaux colloïdaux), il est aussi possible de trouver une voie de synthèse pour accéder aux bandes télécoms bien que leurs performances n'égalent pas celles obtenues à 930 nm [112]. Un état de l'art des SPE dans les bandes télécoms est présenté ci-dessous.

1.3.2 Émetteurs dans les bandes télécoms

Historiquement, les premiers SPE dans les bandes télécoms sont des boîtes quantiques InAs/GaAs [113]. Ces boîtes émettent dans la bande télécom O (entre 1260 et 1360 nm). Elles sont obtenues en laissant croître une couche de InAs sur un substrat de GaAs sur une épaisseur plus élevée que pour la fabrication usuelle de ce type de boîtes épitaxiées. Cette croissance est peu sélective et seules les plus grosses boîtes, c'est-à-dire de plus de 10 nm de hauteur sur l'image AFM figure 1.25, parviennent aux longueurs d'ondes télécoms. Elles atteignent une valeur $g^{(2)}(0) < 20\%$ uniquement à température cryogénique (voir figure 1.25b).

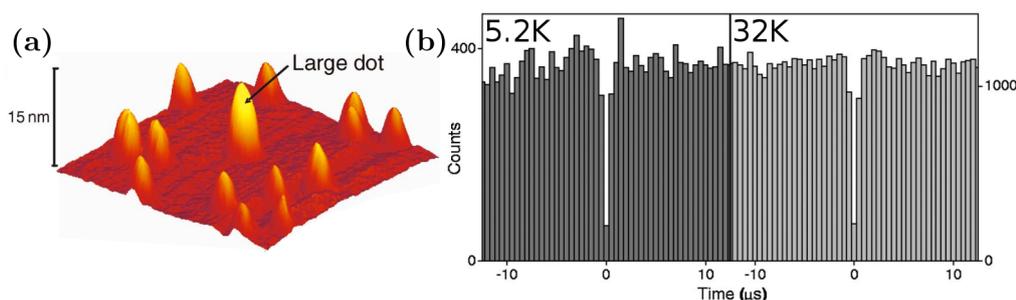


FIGURE 1.25 – (a) Balayage de 300×300 nm par AFM de la surface de croissance de boîtes quantiques épitaxiées InAs/GaAs. (b) Corrélations d'intensité $g^{(2)}$ de la raie d'émission excitonique de ces boîtes quantiques à 5,2 K et à 32 K. Tiré de [113].

La plupart des boîtes fabriquées de cette manière émettent en dehors de la bande d'intérêt et leur longueur d'onde d'émission est limitée à $1,3 \mu\text{m}$. Pour émettre préférentiellement dans les bandes télécoms, un autre type de boîtes quantiques a été développé. La croissance de InAs sur un substrat de InP donne des SPE jusqu'à 1550 nm pour une valeur de $g^{(2)}(0)$ inférieure à 13% à température cryogénique [114]. Leur dispersion de longueur d'onde d'émission est très large et s'étale de 880 à 1550 nm [115]. Depuis peu, l'émission de photons uniques a pu être maintenue jusqu'à 93 K [116].

Bien que cela n'ait pas encore été observé, il est possible d'espérer une émission de photons uniques dans les bandes télécoms à partir de matériaux bidimensionnels. En effet, ces nouveaux matériaux offrent une très large gamme d'énergies d'émission [117] et un dégroupement de photons a déjà été démontré dans le visible pour des excitons localisés dans du sélénure de tungstène (WSe_2) [118, 119, 120, 121] jusqu'à 160 K [122] et dans du nitrure de bore hexagonal (hBN) [123]. Quelques couches de phosphore

1.3. ÉMISSION DE PHOTONS UNIQUES

noir (*black phosphorus*) pourraient présenter les propriétés recherchées : émission dans les bandes télécoms [124, 125] et localisation des excitons [126]. Cependant, ce matériau réagit vivement avec l'oxygène dissous dans l'eau adsorbée à sa surface [127]. Il a une durée de vie de quelques heures en atmosphère non contrôlée et de quelques jours une fois passivé par une couche de hBN. Dans le cadre de cette thèse, une collaboration avec l'équipe de Qihua Xiong de l'université technologique de Nanyang à Singapour nous a permis d'avoir accès à un échantillon de phosphore noir. Bien que protégé par une couche de nitrure de bore, l'échantillon avait déjà commencé à se dégrader à son arrivée (voir figure 1.26) et aucun signal de photoluminescence n'a été détecté.

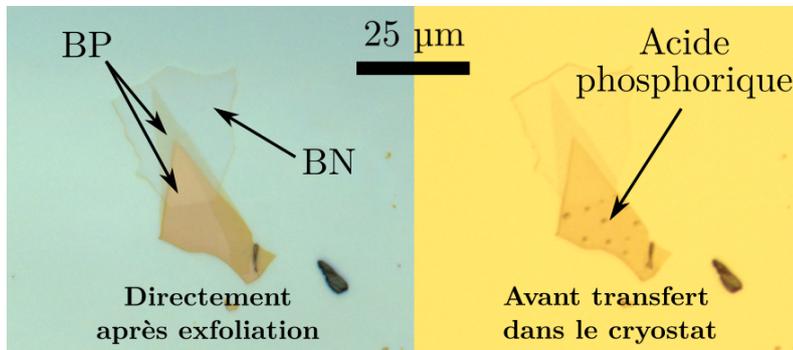


FIGURE 1.26 – **À gauche** : Échantillon de phosphore noir protégé par un pétale de nitrure de bore après exfoliation à l'université technologique de Nanyang à Singapour. **À droite** : Échantillon avant transfert dans le cryostat. Malgré un envoi sous atmosphère protégée, le phosphore noir se dégrade à cause de l'humidité.

Les nanocristaux de sulfure de plomb émettent aussi dans les bandes télécoms [128]. En contrôlant leur diamètre lors de la synthèse, leur émission peut être choisie entre 700 et 1700 nm avec une dispersion de plus d'une centaine de nm. La figure 1.27a en donne une image par fluorescence. Protégé par une coquille de CdS, ils ont l'avantage de présenter un dégrouement de photons ($g^{(2)}(0) \approx 19\%$) à température ambiante [129] (voir figure 1.27b). Toutefois, leur émission est peu stable : elle scintille fortement et photoblanchit. D'autres types de nanocristaux colloïdaux comme InSb, HgTe ou PbTe émettent dans les bandes télécoms [130] mais leur statistique d'émission n'a pas encore été étudiée.

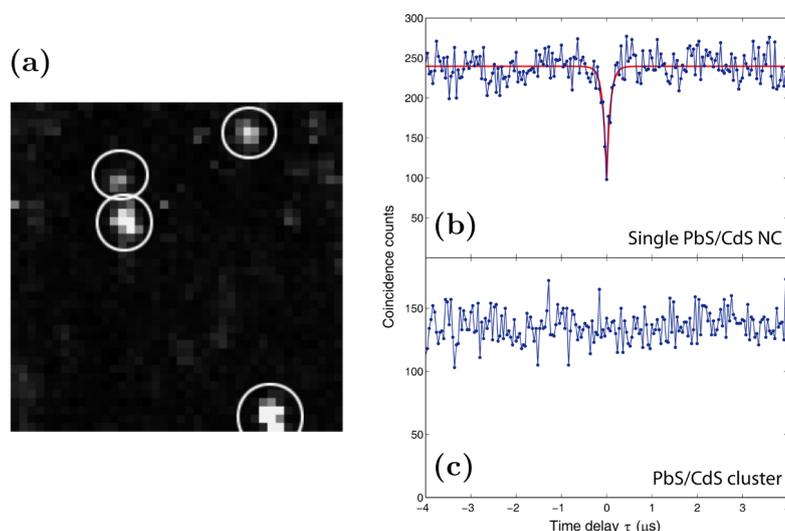


FIGURE 1.27 – (a) Image de fluorescence de nanocristaux colloïdaux uniques de PbS par microscopie confocale sous atmosphère d’azote. La taille de l’image est de $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ avec une résolution de 500 nm. Tiré de [128]. (b,c) Fonction de corrélation $g^{(2)}$ pour des nanocristaux cœur/coquille PbS/CdS. Tiré de [129]. (b) Un dégroupement de photons est observé sur un nanocristal unique ($g^{(2)}(0) \approx 19\%$). (c) Ce dégroupement n’est plus observé pour l’émission d’un agrégat de nanocristaux (voir partie précédente).

Toujours à température ambiante, l’émission de photons uniques dans la bande télécom O a été démontrée récemment dans des défauts de nitrure de gallium [131] et de carbure de silicium cubique [132]. Dans les deux cas l’émission est particulièrement brillante (de l’ordre de $\sim 1,5$ MHz) et atteint une valeur $g^{(2)}(0)$ de 5%. Ces défauts apparaissent de façon stochastique et leur origine est encore méconnue.

Quant aux CNT, il est possible de choisir leur longueur d’onde d’émission de façon déterministe (dispersion d’une trentaine de nm [15]) en isolant chimiquement une chiralité précise. Un dégroupement de photons a été observé à température cryogénique en 2008 [20] et à température ambiante et dans les bandes télécoms en 2015 [21, 22] (voir figure 1.28). Ce phénomène est interprété par la combinaison de deux effets : la localisation des excitons [20] et l’annihilation rapide des paires d’excitons par effet Auger [133].

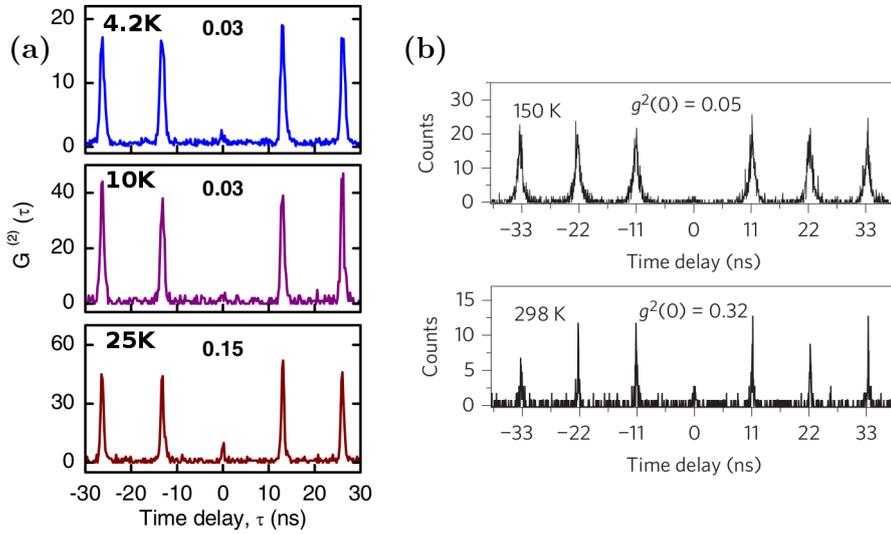


FIGURE 1.28 – (a,b) Corrélation de l’intensité $g^{(2)}$ en excitation impulsionnelle d’un nanotube de carbone. L’absence de pic central est la preuve de l’émission de photons uniques. (a) $g^{(2)}$ à températures cryogéniques pour des nanotubes non dopés. Tiré de [20]. (b) $g^{(2)}$ à 150 K et à 298 K pour des nanotubes comportant des défauts induits éther ou époxy. Tiré de [22].

Dans le cas du piégeage des excitons dans des défauts « naturellement » présents dans les nanotubes la probabilité d’émission de photons uniques reste assez faible à température ambiante ($g^{(2)}(0) > 50\%$) [21]. Toutefois, ce problème est résolu en induisant un dopage par voie chimique : $g^{(2)}(0)$ de l’ordre de 30% pour des défauts induits éther ou époxy [22] et inférieur à 3% pour des défauts aryle-diazonium [32]. Ce sont ces derniers qui ont principalement été utilisés dans cette thèse grâce à une collaboration avec le groupe de Stephen Doorn du laboratoire national de Los Alamos. Cependant, en l’absence de détecteurs adéquats dans les bandes télécoms, leur émission de photons uniques n’a pas été vérifiée dans cette thèse.

Les différences entre les principaux SPE dans les bandes télécoms sont résumées dans le tableau 1.3.

CHAPITRE 1. PROPRIÉTÉS OPTIQUES DES NANOTUBES DE CARBONE

TABLE 1.3 – Résumé des différentes propriétés des SPE dans les bandes télécoms : leur dispersion spectrale σ_λ , leurs largeurs spectrales d'émission $\Delta\lambda$, leur probabilité d'émettre plus d'un photon à la fois à température ambiante, leur environnement et leurs spécificités. Les largeurs spectrales pour les CNT sont obtenues dans le cadre de cette thèse par la méthode décrite partie 1.2.2.

Émetteurs	Boîtes épitaxiées	Centres colorés		Nanocristaux	Défauts/CNT	
	InAs/InP [115]	D/GaN [131]	D/SiC [132]	PbS	naturels	induits
σ_λ (nm)	~20	~150		~100 [128]	~20 [15]	
$\Delta\lambda$ à T_{cryo} (nm)	~0,2	n/a	~100	n/a	~0,8	~0,4
$\Delta\lambda$ à T_{amb} (nm)	n/a	3 à 50	~200	~100 [128]	~50	~50
$g^{(2)}(0)$ à T_{amb}	-	< 15%		~ 20% [129]	> 50% [21]	< 3% [32]
Environnement	Matrice			Nanostructure		
Spécificités	Fabrication complexe	Brillance élevée, 1 à 1,3 μm		Scintillement, blanchiment	Faible rendement	

Conclusion

Ce chapitre présente les nanotubes de carbone comme des émetteurs de choix pour réaliser une source de photons uniques dans les bandes télécoms. Parmi les différents émetteurs accessibles dans cette gamme de longueurs d'onde, les défauts dans les CNT procurent certains avantages :

- Ils offrent un contrôle de la longueur d'onde d'émission sur une très large place à travers une sélection de la chiralité des CNT et un éventuel dopage (voir partie 1.2.1.2).
- Ils sont faciles à produire, à purifier et à déposer.
- Leur largeur d'émission est assez fine comparativement aux autres émetteurs télécoms.
- Ils sont adaptables à tout type de dispositif puisque ce sont des nanostructures isolées contrairement aux boîtes épitaxiées et aux centres colorés.
- Leur émission est stable. Pour les CNT étudiés dans cette thèse, le paramètre de Mandel (voir partie 1.2.2.2) reste inférieur à la dizaine [32, 99]

Leur facteur de qualité $Q_{\text{ém}}$ peut aussi être optimisé en prenant quelques précautions particulières en terme d'environnement et de conditions d'excitation. Néanmoins, le rendement quantique des CNT est assez faible (de l'ordre de quelques pourcents pour les défauts naturels à 28% pour certains défauts induits [134, 135]). Leur brillance est deux à trois ordres de grandeur inférieure aux centres colorés. Cette difficulté peut malgré tout être compensée en exaltant leur émission spontanée grâce à une cavité optique comme expliqué dans les chapitres 3 et 5.

1.3. ÉMISSION DE PHOTONS UNIQUES

De par leur confinement unidimensionnel, les CNT sont des nanostructures inattendues dans le cadre des SPE. En effet, les mécanismes menant à la localisation des excitons dans les CNT (expliquant aussi le dégroupement des photons émis) forment un sujet de recherche actuel. Le chapitre suivant propose un modèle de localisation non intentionnelle des excitons appuyé sur des données expérimentales acquises durant cette thèse.

2

LOCALISATION NON-INTENTIONNELLE DES EXCITONS

Sommaire

2.1 Localisation des excitons	47
2.1.1 Piégeage des excitons	49
2.1.2 Imagerie hyper-spectrale super-résolue	51
2.2 Photoluminescence résolue en excitation	54
2.2.1 Constatations expérimentales	54
2.2.2 Simulation du mécanisme de piégeage	56
2.2.3 Parallèle avec les nanotubes de carbone dopés	59

L'énergie de liaison des excitons dans les CNT est de plusieurs centaines de meV, ces quasi-particules sont stables même à température ambiante ($k_B T_{\text{amb}} \approx 26$ meV). À cette température, des études ont montré qu'ils étaient libres de diffuser en corrélant le niveau de photoluminescence avec un nombre statistique de sites de recombinaison non-radiatifs induits dans les CNT [136, 137, 138]. Toutefois, cette description est remise en question à température cryogénique. En effet, le spectre de PL d'un CNT (voir annexe A.3) s'écarte radicalement de celle attendue pour un objet unidimensionnel [27, 28, 104]. Son émission est soumise à de la diffusion spectrale, un élargissement inhomogène [25, 103] et présente un dégroupement de photons [20]. Ces comportements sont caractéristiques d'un système zéro-dimensionnel et entrent en contradiction avec l'hypothèse d'un exciton délocalisé sur toute la structure.

Ce chapitre présente une étude du comportement 0D des excitons. Les sites d'émission des CNT sont résolus spatialement avec une précision supérieure à la limite de diffraction puis, sondés par une mesure de photoluminescence en excitation. Les résultats obtenus sont modélisés par un mécanisme de piégeage des excitons interprété comme une interaction entre l'exciton et l'environnement local du CNT.

2.1 Localisation des excitons

Les différentes signatures expérimentales du comportement 0D des excitons pourraient s'interpréter par la présence de sites de piégeages des excitons le long

2.1. LOCALISATION DES EXCITONS

des CNT. Ces pièges sont en général attribués à des défauts dans la structure des CNT ou à l'interaction avec des objets environnants [139, 29, 41]. Ils peuvent être causés par une interaction avec le substrat ou avec un polymère enveloppant le CNT (voir partie 1.2.1.2), par une molécule adsorbée à l'extérieur ou à l'intérieur du CNT, par des défauts structurels non intentionnels ou induits. La profondeur du piège est déterminée par le type de liaison et varie de quelques dizaines [140, 141, 29] pour des défauts naturels à quelques centaines de meV [22] lorsqu'ils sont induits. Lorsque le défaut est très profond, pour un dopage chimique par exemple, des transitions supplémentaires apparaissent par brisure de symétrie des états noirs associés à la transition S_{11} naturelle du CNT [79, 96]. Dans ce cas, la transition propre au défaut (la plus décalée vers le rouge) est appelée S_{11}^* .

Par exemple, pour des CNT (6,5) dopés au 3,5- dichlorobenzène observés en photoluminescence à basse température, des pics correspondant à la S_{11} apparaissent entre 1000 et 1030 nm tandis que ceux dus à la S_{11}^* s'étalent entre 1100 et plus de 1400 nm [96].

Un résumé des sources possibles de piégeage des excitons est donné figure 2.1.

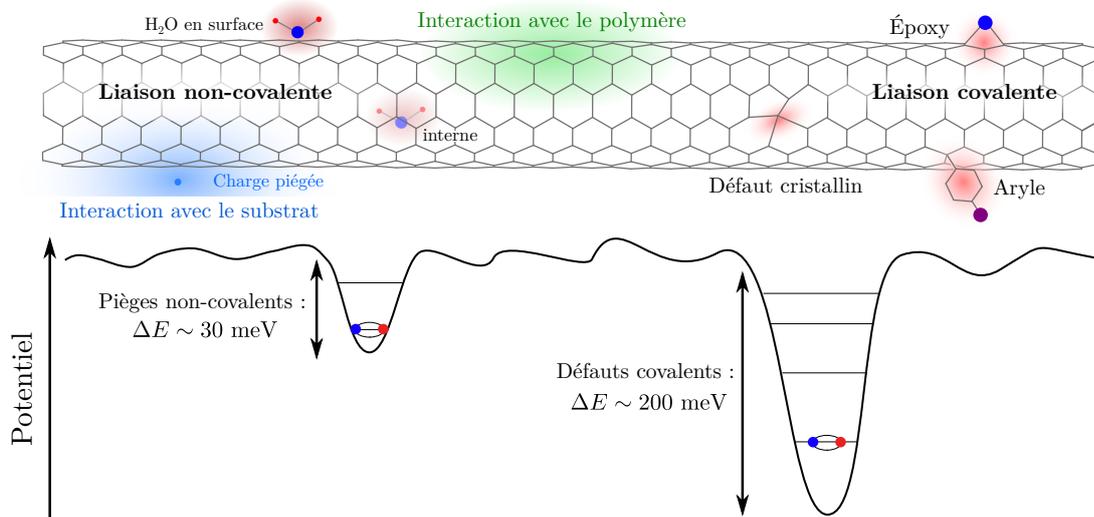


FIGURE 2.1 – Résumé des différents types de pièges des excitons dans les CNT. Les pièges peuvent être non intentionnels et provenir de molécules adsorbées à la surface, à l'intérieur ou à proximité du CNT, d'interaction avec le substrat ou avec un polymère enrobant le CNT ou de défauts cristallins. Ils peuvent aussi être induits par une oxydation du CNT (défaut éther ou époxy) ou par la réaction avec un sel aryle-diazonium (voir partie 1.2.1.2) par exemple. La profondeur des puits de potentiels créés par les défauts dépend du type de liaisons : quelques centaines de meV pour les pièges covalents et quelques dizaines pour les autres. Adapté de [60].

Un meilleur contrôle des échantillons nécessite une compréhension fine de l'interaction des CNT avec leur environnement. Ainsi, une étude, développée dans la partie 2.1.1, a été menée pour confirmer la localisation des excitons et modéliser leurs mécanismes de piégeage. Enfin, l'émission de photons uniques des CNT est une autre démonstration expérimentale de la localisation des excitons. Cette propriété cruciale dans le cadre de cette thèse est abordée dans la partie 1.3. Cette partie permet de comprendre l'importance des CNT comme émetteurs de photons uniques dans les bandes télécoms en dressant un état de l'art de ce domaine.

2.1.1 Piégeage des excitons

J'ai initié cette étude de la localisation des excitons sur les premiers mois de mon doctorat puis elle a été poursuivie et largement complétée par Christophe Raynaud [60] pour donner lieu à un article [41]. Sauf dans la partie 2.2.3, les mesures présentées ici sont issues d'un dispositif expérimental similaire à celui présenté figure 1.15. Pour seules différences, la lentille asphérique est remplacée par un objectif achromatique Mitutoyo M Plan APO NIR 100x. en dehors du cryostat, les CNT utilisés sont des CoMoCAT (SG65i, non dopés) dispersés par l'équipe de Jana Zaumseil à l'université de Heidelberg et, puisque leur émission se situe autour de 1 μm , la caméra est un capteur CCD silicium Princeton Instruments PyLoN:100BR.

Partant du principe que les excitons sont piégés, leur longueur de localisation peut être obtenue indirectement à partir de la forme des PSB (voir annexe A.3). L'étendue spectrale des PSB est en effet inversement proportionnelle à l'extension de la fonction d'onde du centre de masse de l'exciton. Ainsi la longueur de localisation correspondant à cette extension spatiale est en général comprise entre 3 et 10 nm [28, 63, 60]. Pourtant, pour la plupart des CNT dont la longueur ne dépasse pas quelques centaines de nm, seul un site d'émission est observé [142]. Dans le cas de CNT plus longs (au delà de 500 nm), il arrive que l'émission large à température ambiante se divise en de multiples raies fines lors de la descente en température [143, 29, 41], un exemple typique est visible sur la figure 2.2. Ces raies d'émission proviendraient vraisemblablement de différents émetteurs localisés au sein d'un même CNT. Cela soulève la question de savoir ce qui limite la distance typique entre deux sites d'émission.

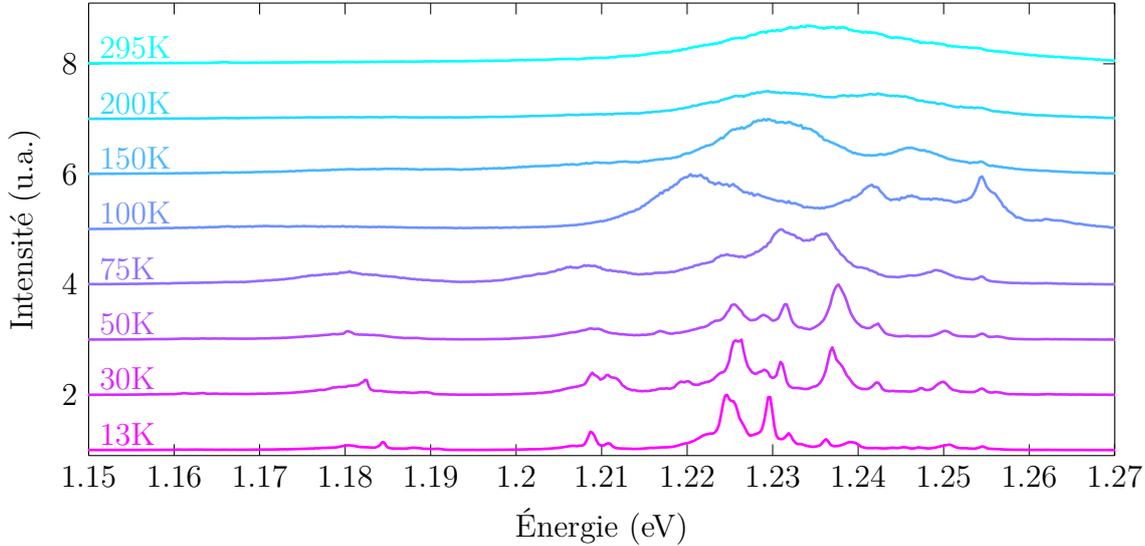


FIGURE 2.2 – Spectres de photoluminescence d’un CNT pour différentes températures. Lors de la descente à froid, l’émission se fragmente en de multiples raies plus étroites sur une fenêtre de plus de 50 meV. Adaptée de [41].

Puisque l’énergie de liaison de l’exciton est grande devant la profondeur typique des pièges, la répartition de l’énergie des raies d’émission reflète directement leur distribution en profondeur¹. Toutefois, l’énergie de référence qui serait associée à celle d’un exciton libre est difficile à estimer. Cette bande excitonique pourrait irriguer les différents sites de piégeage par relaxation non radiative sans pour autant être visible en PL. L’énergie de référence peut malgré tout être estimée en considérant l’énergie d’émission à température ambiante, car elle provient d’excitons libres. Il faut néanmoins prendre en compte un décalage vers le bleu dû au refroidissement (10 meV pour des CNT (6,5)) [144]. La plupart des énergies mesurées correspondent à une profondeur de puits comprise dans l’intervalle 10 à 35 meV en accord avec la littérature [29]. Cela signifie qu’un exciton est localisé à 10 K mais peut facilement s’extraire d’un puits de potentiel grâce à l’agitation thermique à 300 K. Ce comportement est cohérent avec des études précédentes qui montrent une répartition statistique entre des excitons piégés et des excitons libres à température ambiante [140] et leur diffusion sur plusieurs centaines de nanomètres [136]. Quelques raies semblent néanmoins correspondre à une profondeur de puits nettement supérieure à 25 meV. Ainsi, comme démontré récemment [21], certains excitons restent localisés même à température ambiante (voir partie 1.3.2). À l’inverse, certaines raies d’émission sont plus hautes en énergie que la référence. Ce phénomène amène à s’interroger sur l’existence réelle d’une bande excitonique correspondant aux excitons libres (voir partie 2.2.2).

Le spectre d’émission est en général totalement reconfiguré lorsque l’échantillon est

1. L’électron et le trou ne sont pas confinés séparément, le piège localise le centre de masse de l’exciton.

remonté à température ambiante puis refroidi à nouveau. Ainsi, l'agitation thermique à température ambiante suffit à modifier la profondeur des pièges excitoniques. Ces variations locales d'énergie potentielle pourraient s'interpréter comme une légère reconfiguration du polymère enveloppant les CNT (PFO-BPy). En effet, comme la fonction d'onde de l'exciton déborde du CNT, l'énergie d'émission est très sensible aux changements locaux de permittivité diélectrique. Pour un environnement de moins de 2,5 de permittivité relative et une rugosité de quelques angströms à l'interface avec le CNT, ces variations d'énergie peuvent atteindre 90 meV [145].

Pour prouver que ces différentes raies d'émission sont issues de pièges différents au sein d'un même CNT, une méthode d'imagerie hyper-spectrale super-résolue a été mise en place. Elle est présentée dans la partie 2.1.2. En outre, pour avoir une vision plus précise du paysage énergétique environnant un CNT, les sites de piégeages sont sondés grâce à leur photoluminescence en excitation (PLE) quasi-résonante. Un modèle, résumé dans la partie 2.2.2, a été construit pour expliquer ces résultats expérimentaux en simulant la diffusion des excitons au sein d'un CNT. Enfin, la partie 2.2.3 propose quelques pistes pour généraliser des résultats de cette étude aux CNT dopés.

2.1.2 Imagerie hyper-spectrale super-résolue

L'exciton étant supposé localisé, l'extension spatiale de la fonction d'onde de son centre de masse est très faible par rapport à la longueur d'onde (entre 4 et 6 nm pour cet échantillon [41]). Il peut donc être considéré comme un émetteur ponctuel dans le dispositif de micro-PL. La tache de collection à l'entrée du spectromètre correspond donc à la réponse impulsionnelle spatiale du dispositif optique. Or, le centre de cette tache peut être repéré très précisément au delà de la limite de diffraction. Cette technique de super-résolution a été initialement développée dans le cadre de la spectroscopie de molécules uniques dans des échantillons dilués [146]. Son incertitude sur la position de l'émetteur dépend uniquement du rapport signal sur bruit.

Les positions de différents sites d'émission au sein d'une même nanostructure peuvent être distingués grâce au protocole suivant :

- Une carte de PL ($17 \times 17 \mu\text{m}^2$, voir figure 2.3a) est réalisée en balayant l'échantillon grossièrement au moyen du miroir contrôlé (voir annexe A.2) pour trouver un CNT présentant plusieurs raie d'émission² (comme les spectres des figures 2.2 à 13 K et 2.3c).
- Puis un balayage fin ($1,7 \times 1,7 \mu\text{m}^2$ par pas de 170 nm, voir figure 2.3b) est effectué autour de ce CNT, le spectre de PL est enregistré pour chaque point de la carte.

2. Cet événement est rare dans le cas de CNT courts (quelques centaines de nanomètres de long) alors qu'il est quasi-systématique dans le cas des CNT d'environ $2 \mu\text{m}$ de longueur moyenne obtenus par collaboration avec l'équipe de Jana Zaumseil.

- Chaque raie est intégrée sur une portion étroite du spectre comme indiqué par les aires colorées 2.3c pour chaque point balayé. Cela permet de construire une carte de PL (voir figures 2.3d-g) propre à chaque raie d'émission.
- Les positions des barycentre d'intensité de chaque tache sont reportées sur la figure 2.3h.

Les taches de PL visibles sur les cartes sont manifestement décalées les unes par rapport aux autres. Cela prouve que les raies sont issues d'émetteurs situés à des positions différentes. Toutefois, la précision avec laquelle ces positions sont repérées est délicate à estimer. En principe, pour un émetteur présentant des fluctuations d'intensité poissonnienne (facteur de Mandel $Q_M = 1$), enregistrer l'intensité de l'émission sur deux pixels dans chaque direction suffit à résoudre la position de l'émetteur avec une précision arbitraire [147, 148]. Toutefois, dans le cas d'un émetteur moins stable (voir partie 1.2.2.2), la résolution en position dépend à la fois du rapport signal sur bruit et du pas choisi pour effectuer le balayage. De plus, elle est aussi limitée par une dérive lente du système (thermique ou mécanique). Ainsi, selon la stabilité des CNT, les balayages comprennent entre 25 et 100 points. En utilisant des méthodes indépendantes basées soit sur l'analyse des statistiques de bruit, soit sur la reproductibilité des cartes, l'incertitude sur la position de l'émetteur est estimée à environ 15 nm.

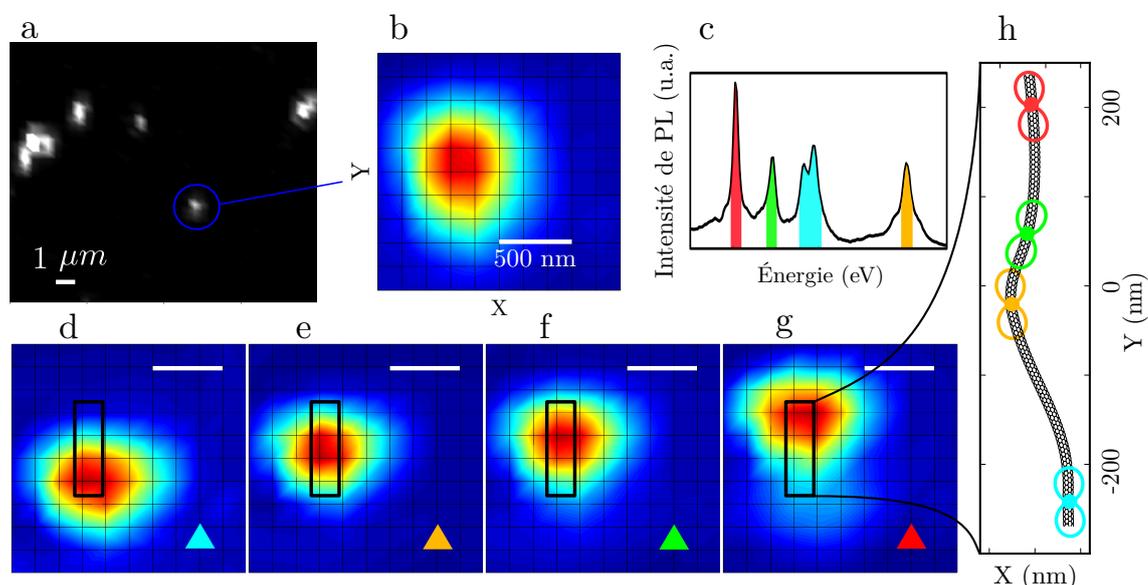


FIGURE 2.3 – Principe d’imagerie hyper-spectrale super-résolue. **(a)** Balayage grossier de l’échantillon à l’aide du miroir contrôlé. **(b)** Balayage fin de la zone entourée sur la carte (a). **(c)** Spectre de PL du CNT observé en (b). **(d-g)** Cartes de PL du même nanotube pour un filtrage spectral de la luminescence selon les aires colorées sur le spectre (c). **(h)** Emplacement du barycentre en intensité des cartes de PL (d-g). Chaque point est représenté par le diagramme de polarisation de la PL de la raie correspondante de façon à indiquer l’orientation locale du nanotube. Une représentation schématique du CNT correspondant aux mesures a été ajoutée (son diamètre n’est pas à l’échelle). Adaptée de [41].

La distance caractéristique entre deux barycentres d’intensité (de l’ordre de 100 nm) est nettement supérieure à la limite de résolution. Cela permet de résoudre distinctement les différents sites de piégeage des excitons sur un même CNT sans nécessiter une étude en champ proche qui pourrait perturber la localisation des excitons.

Afin de vérifier si la distribution spatiale des sites de piégeage est cohérente avec la topographie d’un CNT unique, chaque raie d’émission a été étudiée en polarisation. En effet, l’orientation locale du CNT au niveau de l’émetteur est donnée par le diagramme de polarisation (voir partie 1.1.2.1). Le contraste en polarisation est de l’ordre de 30 ce qui donne une précision sur l’orientation de quelques degrés pour un. Les diagrammes de polarisation sont reportés sur la figure 2.3h et leurs orientations sont cohérentes avec le passage d’un CNT unique par tous les sites d’émission.

Cette étude a été répétée sur un grand nombre de CNT ce qui a permis d’obtenir la distribution statistique de la distance entre plus proches sites d’émission voisins. Deux exemples supplémentaires ainsi que la distribution globale sont visibles sur la figure 2.4.

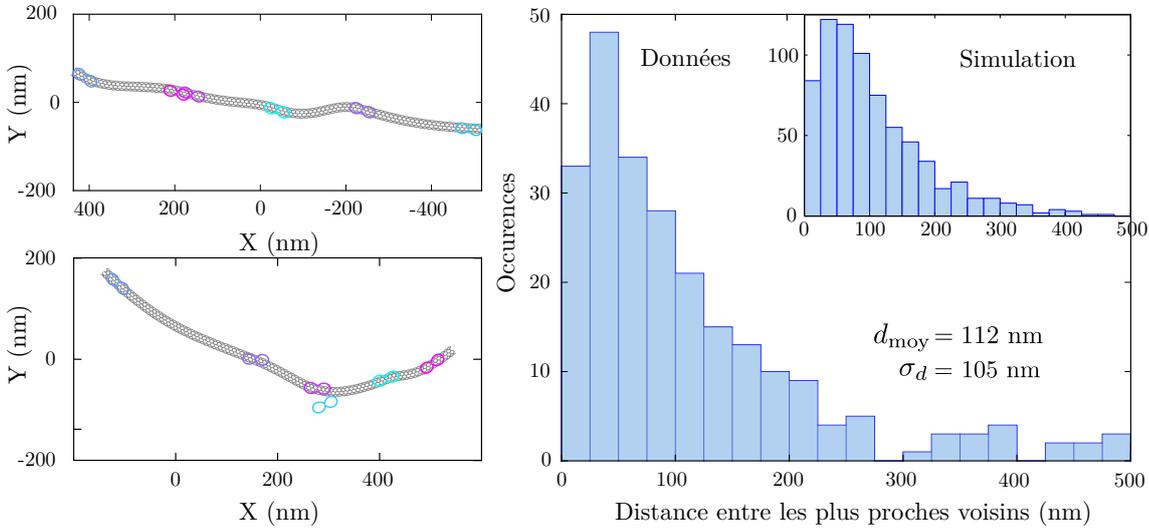


FIGURE 2.4 – **À gauche** : Deux mesures supplémentaires de la position des pièges excitoniques au sein d’un CNT associée à celle du diagramme de polarisation indiquant l’orientation locale du CNT. **À droite** : Distribution statistique de la distance entre plus proches sites d’émission voisins. La largeur des classes correspond à la résolution expérimentale. Une simulation de la distribution des sites de piégeage est donnée dans l’encart. Elle prend en compte le potentiel aléatoire le long du CNT tracé sur la figure 2.6 (distance moyenne entre les pièges de 70 nm) et suppose que 50% des sites d’émission ne sont pas détectés dans les conditions expérimentales. Adaptée de [41] (SI).

La distribution de la distance entre plus proches sites d’émission voisins a une moyenne de 110 nm et un écart-type de 100 nm. Cela reflète une distribution aléatoire de pièges excitoniques le long de l’axe des CNT ainsi qu’une longueur caractéristique qui pourrait correspondre à l’étendue spatiale de capture des excitons. La longue queue de cette distribution peut être attribuée à l’existence de pièges non détectés (raie se chevauchant ou émettant trop faiblement) ce qui augmente artificiellement la distance moyenne entre deux sites. Cette distribution est bien modélisée par une distance moyenne entre sites de 70 nm et environ 50% de sites non détectés. Étant donné que les extrémités d’un CNT agissent comme des défauts non radiatifs, cette distance moyenne est cohérente avec l’observation d’une seule raie d’émission sur les CNT de moins de 200 nm de long [142, 27, 28].

2.2 Photoluminescence résolue en excitation

2.2.1 Constatations expérimentales

Comme mentionné dans la partie 1.1.2.2, une relaxation non radiative permet de peupler les niveaux bas en énergie après une excitation hors résonance. Les pièges localisés pourraient donc être irrigués par une bande excitonique commune à

l'ensemble du CNT. Cependant, cette vision est remise en cause par la présence de puits à une énergie supérieure à celle estimée pour l'exciton libre. Pour approfondir ce raisonnement, les états d'énergies proches de celle d'émission ont été sondés par une mesure de PLE quasi-résonante.

Pour ce faire, l'énergie du laser Titane:Saphir est balayée par pas de 1,5 meV entre l'énergie de PL et 1,65 eV et, pour chaque énergie d'excitation, un spectre du CNT est enregistré. Chaque spectre est normalisé par l'intensité d'excitation. À une énergie d'excitation relativement élevée (à partir de 100 meV au dessus de l'énergie de PL), les spectres d'excitation intégrés sur chaque raie d'émission sont assez similaires (encart à droite de la figure 2.5). La résonance large vers 200 meV correspond au pic d'absorption X_2 du à l'absorption assistée par un phonon de bord de bande sur les excitons noirs KK' (voir partie 1.1.2.2). Ces excitons possèdent un vecteur d'onde de centre de masse non nul et sont donc délocalisés. Cela leur permet de se coupler à tous les états piégés.

Pour chacune des raies de PL, une série de résonances en excitation est observée, lorsque l'excitation atteint la fenêtre correspondant au pic d'absorption de la S_{11} à température ambiante (voir figure 2.5).

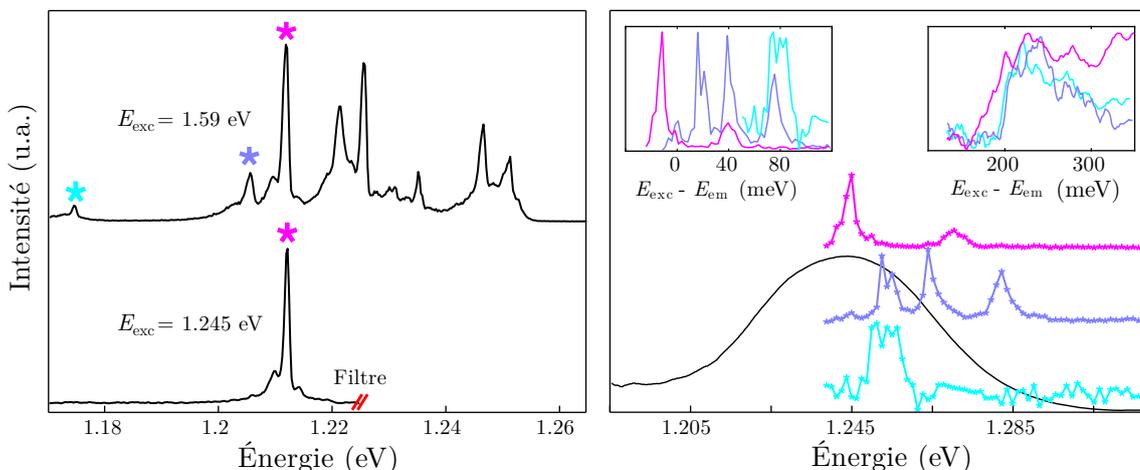


FIGURE 2.5 – **À gauche** : Spectres de PL à 13K obtenu pour une excitation hors-résonance à 1,59 eV (filtrage passe-haut à 1,26 eV) et pour une excitation sélective d'un site de piégeage à 1,245 eV. **À droite** : Spectres de PLE quasi-résonante pour trois raies d'émission issues d'un même CNT (repérées par les astérisques sur la figure de gauche). Le spectre d'absorption d'ensemble pour ces CNT (6,5) est tracé en noir. L'encart à gauche correspond aux mêmes spectres de PLE tracés en fonction du désaccord entre l'énergie du laser et l'énergie d'émission de la raie concernée. L'encart de droite représente la PLE à plus haute énergie et en particulier la résonance X_2 commune à toutes les raies d'émission. Adaptée de [41].

Contrairement à la résonance X_2 , ces résonances sont propres à chaque raie d'émission et donc à chaque piège excitonique. L'absence de résonance commune à ces PLE montre que l'excitation ne se produit pas sur une transition propre à un

exciton libre qui irriguerait tous les pièges. De même, tracer ces PLE en fonction de l'écart énergétique entre les raies d'émission et le laser ne fait pas apparaître de résonance caractéristique d'une absorption assistée par phonon (autre que X_2). Les mesures tendent plutôt à prouver que chaque état excitonique localisé est couplé à un ensemble spécifique d'états excités localisés.

En considérant le modèle simplifié d'un exciton de masse $m^* = 0,2m_e$ dans un piège parabolique tronqué (minimum local de potentiel) de profondeur $V_p \approx 20$ à 50 meV et de largeur $l_p \approx 3$ à 10 nm l'intervalle entre les niveaux du piège $\frac{\hbar}{l_p} \sqrt{\frac{V_p}{m^*}}$ est de l'ordre de 15 à 30 meV. Cela donne entre 1 et 3 états confinés dans le piège, conformément au nombre de résonances dans les spectres de PLE.

Même si sa distance avec les pièges voisins est inférieure à la résolution du microscope, chaque piège peut donc être excité indépendamment en utilisant une longueur d'onde appropriée. Un exemple est donné à gauche de la figure 2.5 où une seule raie d'émission est visible lorsque l'excitation est accordée sur un niveau excité spécifique au piège.

2.2.2 Simulation du mécanisme de piégeage

Les observations expérimentales penchent plutôt pour un potentiel totalement aléatoire le long du CNT plutôt que pour une bande excitonique sur laquelle se répartiraient quelques pièges discrets. Pour confirmer cette interprétation, les spectres de PL et PLE ont été simulés numériquement en calculant la diffusion thermique des excitons sur un potentiel aléatoire le long d'un CNT de $1 \mu\text{m}$. Cette partie résume les paramètres utilisés pour modéliser cette diffusion mais n'aborde pas les détails plus techniques développés dans les informations supplémentaires de l'article [41].

Le long du CNT le potentiel vu par l'exciton est modulé de manière aléatoire en supposant une distribution gaussienne des énergies avec un écart-type d'environ 20 meV et une longueur de cohérence spatiale de 16 nm. Dans ce cadre, l'équation de Schrödinger vérifiée par le centre de masse de l'exciton est résolue numériquement afin d'obtenir les états confinés et les fonctions enveloppe. La force relative³ du couplage lumière-exciton f_n est prise en compte dans les calculs [149, 150]. La simulation visible dans l'encart de la figure 2.4 reproduit bien les données expérimentales en supposant que 50% des raies d'émission ne sont pas détectées (trop peu intenses ou chevauchement spectral). La distance moyenne apparente est de 110 nm tandis que la distance réelle entre les sites de piégeage est de 70 nm.

Pour décrire la PL en fonction de la température dans le cas d'une excitation non résonante (par le pic d'absorption X_2 par exemple), les excitons sont initialement répartis de manière aléatoire le long du nanotube. La diffusion et le piégeage des excitons sont calculés en utilisant une probabilité de saut entre sites consécutifs proportionnelle au facteur de Boltzmann pour la différence d'énergie des sites [141].

3. Elle est donnée par le carré de l'intégrale de la fonction enveloppe pour chaque état considéré.

Pour chaque pas temporel, une probabilité de recombinaison radiative est prise en compte. Le spectre PL est obtenu en faisant la somme des raies lorentziennes centrées sur l'énergie de l'état occupé par l'exciton lorsqu'il se recombine radiativement. L'élargissement dû à la température est pris en compte en fixant la largeur de ces lorentziennes à $25T/300$ (meV), où T est la température en kelvins. Cette expression provient de l'interpolation entre les largeurs de raies observées à températures ambiante et cryogénique. La figure 2.6 montre l'évolution du spectre de PL simulé en fonction de la température. Le spectre d'émission simulé reproduit bien la division de l'émission large à température ambiante en de multiples raies fines lors de la descente à froid ainsi que leur étalement spectral. De plus, la moyenne de la longueur de localisation des excitons pour les états confinés associés aux raies d'émission est de 5,5 nm, en accord avec les valeurs expérimentales.

2.2. PHOTOLUMINESCENCE RÉSOUE EN EXCITATION

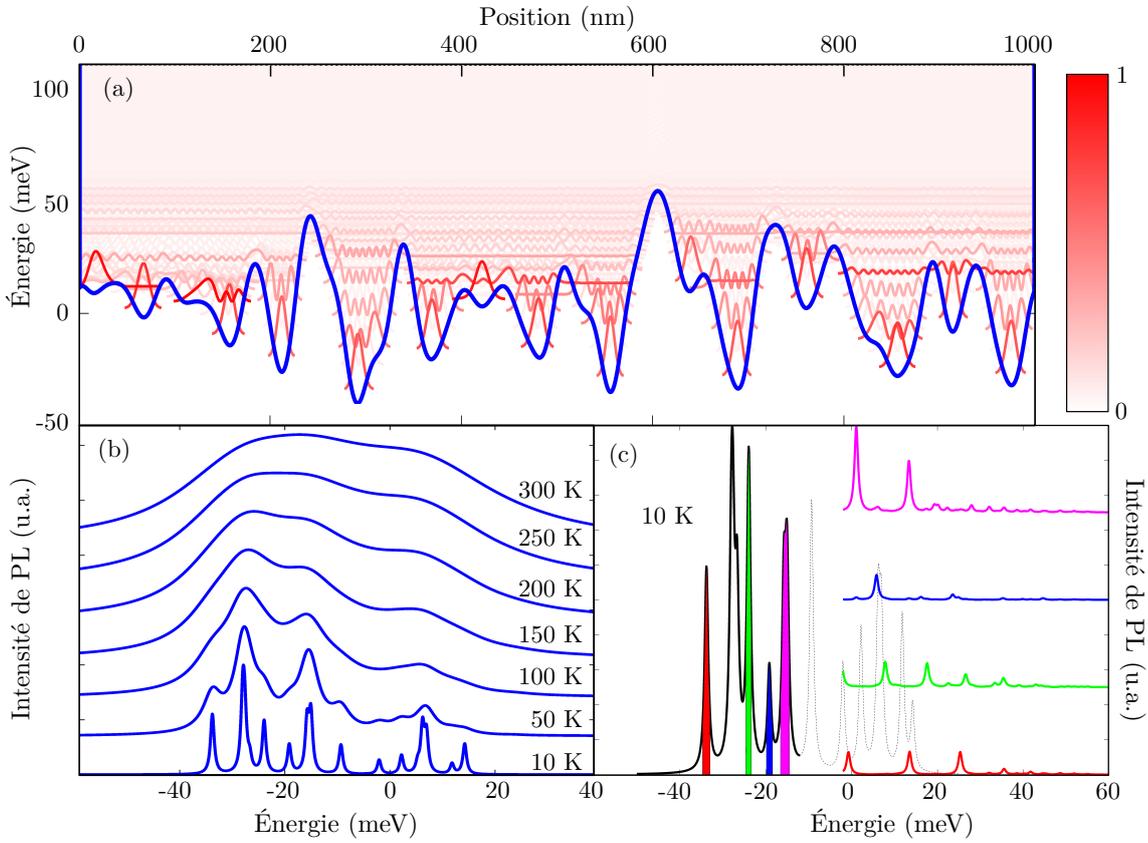


FIGURE 2.6 – (a) Simulation numérique du paysage énergétique vu par un exciton le long d'un CNT. Les fonctions d'onde sont tracées avec un décalage énergétique correspondant à leur énergie propre et leur échelle de couleur est proportionnelle au couplage f_n avec le champ électromagnétique. (b) Simulation des spectres de PL pour différentes températures en supposant une excitation hors résonance et une répartition initiale des excitons gaussienne sur la longueur du CNT. L'intensité de PL traduit la probabilité de recombinaison des excitons dans un état confiné donné. (c) Simulation des spectres de PLE à basse température. L'intensité de PLE traduit la présence d'un état excité bien couplé avec le champ électromagnétique à proximité du piège excitonique considéré. Adaptée de [41].

Pour la simulation des spectres de PLE à basse température l'absorption des états excités est prise en compte. Pour une énergie d'excitation donnée, la densité d'excitons générée dans un état est proportionnelle à f_n puis relaxe immédiatement vers l'état fondamental le plus proche. La largeur des états excités localisés est fixée à 2 meV conformément aux données expérimentales (voir figure 2.5). La figure 2.6c montre les spectres de PLE simulés pour 4 raies du spectre de PL calculés à 10 K (voir figure 2.6b) dans une fenêtre spectrale comparable aux conditions expérimentales. Les spectres simulés présentent en moyenne 2 à 4 résonances qui ne correspondent généralement pas aux raies de PL (partie du spectre en pointillés sur la figure 2.6c). Les états fondamentaux et excités jouent des rôles radicalement différents dans les

propriétés optiques des CNT à basse température. Ainsi, les pièges excitoniques sont indépendants les uns des autres et peuvent être considérées comme différentes boîtes quantiques réparties le long du CNT.

Pour résumer, les variations de permittivité locale à l'interface entre un CNT et son environnement rendent aléatoire le paysage énergétique perçu par l'exciton. La longueur de cohérence de ces variations est de 16 nm (pour correspondre à une distance moyenne entre les pièges excitoniques d'environ 70 nm) et leur écart-type de 20 meV. À basse température, ces variations de potentiel engendrent des spectres de PL comportant plusieurs raies d'émission dues à une localisation systématique des excitons. Pour une excitation quasi-résonante, l'excitation d'un de ces sites de piégeage passe par l'absorption des niveaux excités localisés à proximité. Ce mécanisme explique la disparition de la raie d'absorption S_{11} au profit de résonances marquées et étroites sur les spectres de PLE.

2.2.3 Parallèle avec les nanotubes de carbone dopés

Mis à part le défaut chimique très ponctuel, le paysage énergétique des CNT dopés reste a priori comparable à celui décrit dans les parties précédentes. Des niveaux excités d'énergie proche de la S_{11} localisés non intentionnellement devraient être visibles en absorption. Ainsi, des résonances marquées en PLE sur la S_{11}^* pourraient apparaître en excitant ces niveaux à proximité du défaut chimique. Une étude statistique en PLE n'a cependant pas pu être réalisée car la quasi-totalité des CNT dopés étudiés dans cette thèse sont des (7,5) et leur S_{11} est trop basse en énergie pour être accessible au laser d'excitation. Toutefois, dans le cas de chiralités extrêmement peu représentées⁴, des pics d'absorption fins et très intenses ont été identifiés à l'emplacement de la S_{11} . L'intensité de photoluminescence en fonction de l'énergie d'excitation de ce type de CNT est comparée à celle de chiralités plus répandues dans la figure 2.7. Ces résonances de PLE peuvent être 10 fois plus intenses que la X_2 mais restent suffisamment éloignées de la transition du défaut S_{11}^* pour ne pas éblouir la caméra. Il serait donc possible de minimiser l'excès d'énergie injecté dans les échantillons en excitant les CNT sur les résonances d'énergies proches de la S_{11} . Cela pourrait diminuer la création de charges photo-induites et la diffusion spectrale et permettrait éventuellement d'augmenter le facteur de qualité des CNT [35].

4. A priori des (8,3).

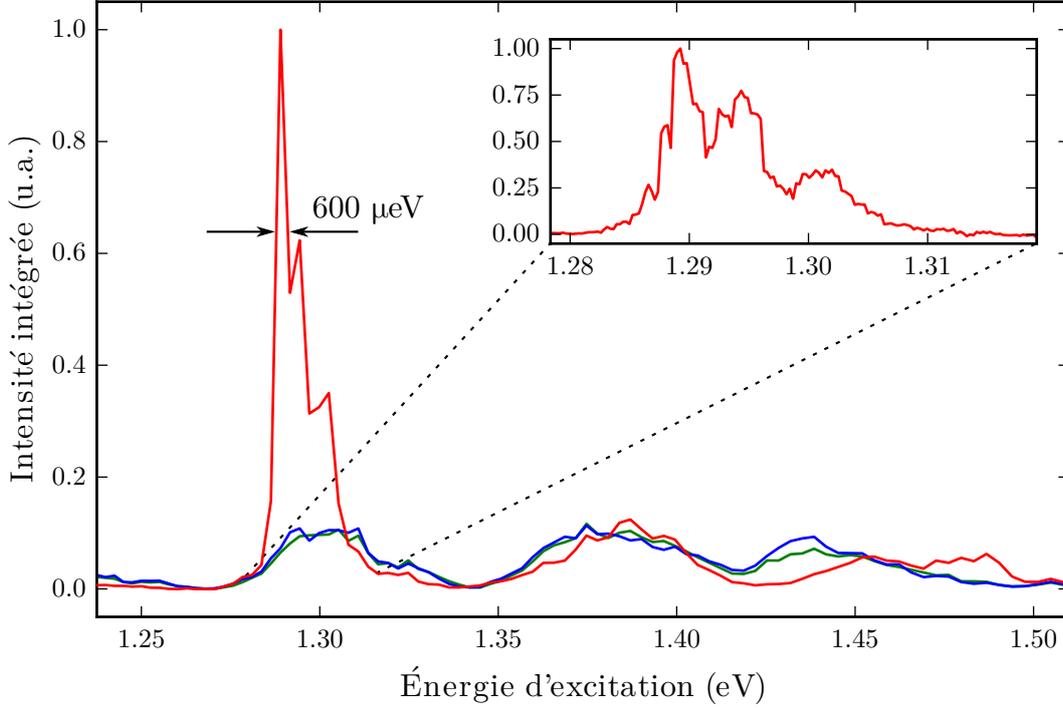


FIGURE 2.7 – Intensité de photoluminescence en fonction de l'énergie d'excitation pour des chiralités de CNT dopés fréquentes (courbes verte et bleue) et pour une chiralité rare dans les échantillons étudiés (courbe rouge). La S_{11} des chiralités fréquentes est au-delà de la limite d'accordabilité du laser Ti:Sa (1,24 eV). Des pics fins et intenses d'absorption apparaissent à l'emplacement de la S_{11} de la chiralité rare, l'encart en haut à droite est un balayage plus résolu de ces pics. Les premiers pics en partant de la droite du spectre sont ceux de l'absorption assistée par phonon optique : ils correspondent à l'énergie d'excitation hors résonance habituelle.

En outre, il arrive aussi d'observer plusieurs raies d'émission très proches qui pourraient provenir de plusieurs défauts chimiques sur un même CNT. Ces raies présentent parfois une corrélation en intensité très marquée comme sur la figure 2.8. Ces corrélations en intensité peuvent être interprétées soit comme une conséquence de la fluctuation locale de l'environnement [20, 60] soit comme un mécanisme de diffusion de l'exciton entre deux sites de piégeage au sein d'un même CNT [60]. Pour vérifier qu'il s'agit effectivement de deux sites de piégeage différents, il serait intéressant d'étudier leur statistique d'émission (voir partie 1.3) ou de les exciter indépendamment en utilisant l'absorption sur les états excités localisés non intentionnellement à proximité des défauts chimiques.

À basse température voire à température ambiante ($k_B T_{\text{amb}} \approx 30$ meV) dans le cas des pièges covalents, les excitons forment des sources de photoluminescence localisées au sein des structures unidimensionnelles que sont les CNT. Une propriété remarquable de ces sources est d'émettre des photons uniques (comme détaillé dans la

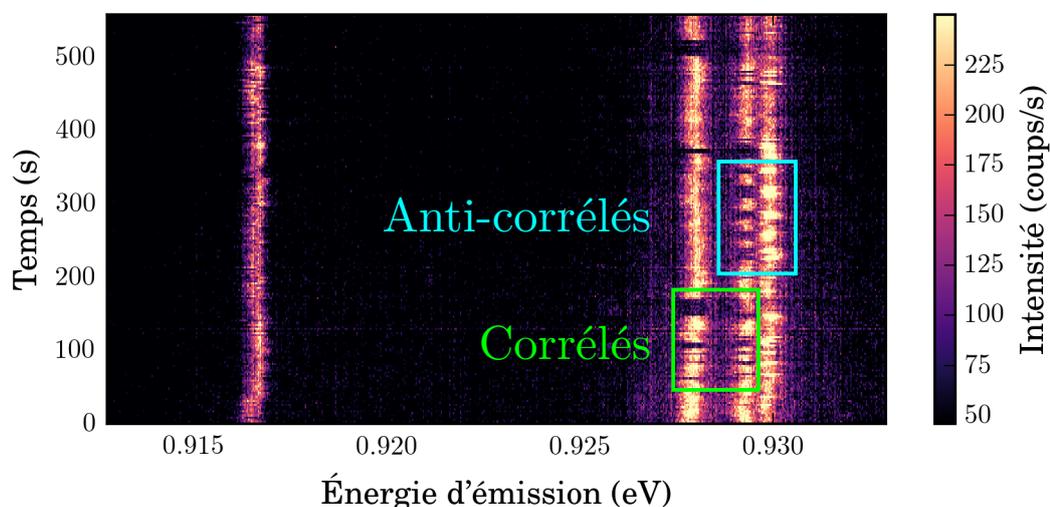


FIGURE 2.8 – Trace temporelle des spectres d’émission de plusieurs émetteurs proches spatialement présentant des corrélations en intensité.

partie 1.3). Ainsi, comme détaillé dans la partie suivante, les CNT peuvent constituer d’excellents émetteurs de photons uniques adaptés aux bandes télécoms.

Conclusion

Ce chapitre présente une étude originale du mécanisme de localisation non-intentionnelle des excitons dans les CNT. Elle met en relief une profondeur typiques des sites de piégeage de l’ordre de quelques dizaines de meV conformément à la littérature et une distance caractéristique d’environ 70 nm entre sites le long d’un même CNT. Un modèle de potentiel aléatoire causé par l’interaction entre les excitons et leur environnement local explique l’apparition des sites de piégeage et l’absence d’exciton libre à température cryogénique. Les sites d’émission au sein d’un même CNT se comportent comme des ‘boîtes quantiques’ individuelles. Ils peuvent être excités simultanément à haute énergie (pic d’absorption X_2 par exemple) ou indépendamment par une excitation résonante sur un niveau excité localisé.

Pour réaliser une source de photons uniques plus performante, la localisation des excitons est rendue systématique par dopage chimique des CNT. Ces derniers présentent une profondeur typique des défauts induits de l’ordre de quelques centaines de meV et émettent des photons uniques même à température ambiante. Bien que leur rendement soit deux à trois fois plus élevé que celui des défauts naturels dans les CNT, il reste toujours relativement faible en comparaison d’émetteurs concurrents. Toutefois, comme détaillé dans le chapitre suivant, il est possible d’améliorer encore les propriétés de la source en adaptant le dispositif d’accueil des échantillons de façon à confiner le champ électromagnétique à proximité de l’émetteur.

3

ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE MICRO-CAVITÉ FIBRÉE

Sommaire

3.1	Couplage émetteur/cavité	63
3.1.1	Contrôler l'émission d'un dipôle	64
3.1.1.1	Rayonnement dipolaire en cavité	64
3.1.1.2	Physique atomique	69
3.1.2	Atome artificiel	72
3.1.2.1	Déphasage pur	75
3.1.2.2	Facteur de Purcell généralisé et efficacité	77
3.1.3	État de l'art expérimental	79
3.1.3.1	Structures de confinement	80
3.1.3.2	Nanotubes de carbone en cavité	86
3.2	Micro-cavité fibrée	97
3.2.1	Cavité Fabry-Pérot	98
3.2.1.1	Modes de cavité	98
3.2.1.2	Transmission	102
3.2.2	Volume de mode	105
3.2.2.1	Micro-miroirs	105
3.2.2.2	Miroir de Bragg	110
3.2.2.3	Volume effectif	117
3.2.3	Finesse réelle	122
3.2.3.1	Mesure de la finesse	122
3.2.3.2	Pertes sèches	125

Les nanotubes de carbone émettent naturellement des photons uniques dans les bandes télécoms. Cependant, leur efficacité quantique est très faible par rapport à d'autres types d'émetteurs comme les nano-cristaux colloïdaux [151] et peu directionnelle. Par analogie avec une antenne radio, un moyen d'augmenter leur rendement serait d'adapter leur environnement électromagnétique. En effet, confiner un champ électromagnétique à proximité d'un dipôle émetteur à l'aide d'une cavité optique exalte son émission vers un mode spatial bien défini. Cet effet, appelé effet Purcell [33], est applicable à tout type d'émetteur et peut être traité d'un point de vue classique comme quantique. Dans le cas d'un système à deux niveaux quasi-idéal, par exemple une transition atomique, le rapport entre la puissance émise en cavité et celle dans l'espace libre ne dépend que de la cavité. Plus précisément, il dépend du facteur de qualité de celle-ci et de son volume de mode et du recouvrement spatial et spectral de ce mode avec l'émetteur.

En matière condensée, il est possible de retrouver les propriétés d'un système à deux niveaux en considérant deux niveaux plus ou moins discrets. Par exemple, l'état excité peut être défini comme l'existence d'un exciton localisé et l'état fondamental comme l'absence d'exciton (voir chapitre précédent). Dans le cas d'un système à deux niveaux parfait, la largeur d'émission \hbar/τ_{coh} (définie par un temps de cohérence) est limitée par le temps de vie $\tau_{\text{ém}}$ en vérifiant la relation $\tau_{\text{coh}} = 2\tau_{\text{ém}}$. Pour un émetteur à l'état solide, l'étendue spectrale de l'émission ne dépend plus uniquement du temps de vie de l'état excité et est élargie par des interactions avec les vibrations de la nano-structure et les fluctuations de l'environnement $\tau_{\text{coh}} < 2\tau_{\text{ém}}$. Ce phénomène, le déphasage pur, nécessite une généralisation de l'effet Purcell et impose un traitement quantique du problème. En outre, un couplage plus ou moins important entre l'exciton et les phonons peut apparaître suivant le rapport d'aspect de la nano-structure. À basse température cela a pour effet de créer une asymétrie des échanges d'énergie entre l'émetteur et la cavité. En faisant varier la résonance de la cavité, l'émission devient accordable sur une plus large plage de longueur d'onde.

3.1 Couplage entre un émetteur et une cavité

Ce chapitre met en relief les leviers sur lesquels agir pour augmenter l'efficacité d'une source par effet Purcell et présente différents moyens expérimentaux de confiner un champ électromagnétique à proximité d'un émetteur. La partie 3.1.1 introduit l'effet Purcell dans le cas d'un émetteur idéal. Elle permet d'identifier des critères pour comparer des cavités optiques et de comprendre l'émission d'un dipôle en cavité comme un couplage entre deux oscillateurs. Quelques cas pratiques de physique atomique y sont abordés succinctement. La deuxième partie est consacrée à la généralisation de l'effet Purcell au couplage entre un émetteur à l'état solide et une cavité. Le système est d'abord exprimé avec les outils de la seconde quantification et le modèle de Jaynes-Cummings puis le déphasage pur et le couplage aux phonons sont introduits. L'efficacité d'une source de photons uniques y est définie. Enfin, une

troisième partie dresse l'état de l'art du couplage entre un émetteur à l'état solide et une cavité dans un cas général et dans l'étude des nanotubes de carbone.

3.1.1 Contrôler l'émission d'un dipôle

Cette partie est dédiée à la comparaison entre l'émission d'un dipôle en espace libre et celle en présence d'un champ électromagnétique confiné. Quelques exemples concrets d'expériences de physique atomique mettant en jeu des émetteurs quasi-idéaux y sont décrits.

3.1.1.1 Rayonnement dipolaire en cavité

Pour contrôler l'émission d'un dipôle, il faut adapter son environnement électromagnétique. Le facteur de Purcell, quantifiant l'augmentation de l'émission, est défini dans cette partie en calculant le rapport des puissances émises (d'un point de vue classique) puis celui des taux d'émission spontanée (d'un point de vue quantique) en cavité et en espace libre. Une analogie entre un dipôle émettant en cavité et deux oscillateurs couplés permet d'isoler une pulsation caractéristique de couplage et de discriminer différents régimes d'échange d'énergie.

Effet Purcell Considérons un dipôle de moment dipolaire \mathbf{p} de position \mathbf{r}_0 rayonnant un champ électrique \mathbf{E} de pulsation ω schématisé figure 3.1. Pour simplifier les notations, le dipôle est supposé dans le vide, $\epsilon = 1$. L'expression de la puissance moyenne P transférée par le rayonnement de ce dipôle au champ optique vaut [152] :

$$P = \left\langle -\frac{d\mathbf{p}}{dt} \cdot \mathbf{E} \right\rangle = \frac{1}{2} \Re \mathfrak{e} [i\omega \mathbf{p} \cdot \mathbf{E}^* (\mathbf{r}_0)] \quad (3.1)$$

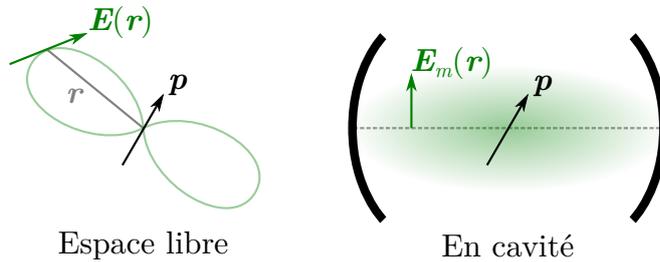


FIGURE 3.1 – À gauche : Dipôle \mathbf{p} émettant un champ \mathbf{E} en espace libre. À droite : Interaction d'un dipôle \mathbf{p} avec un mode de champ d'une cavité optique \mathbf{E}_m .

Le tenseur de Green \mathbf{G} est défini par l'équation vectorielle de Helmholtz dans le vide tel que :

$$\Delta \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) - \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbb{1} \quad (3.2)$$

Il permet de lier le champ \mathbf{E} au moment dipolaire \mathbf{p} :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mu_0 \omega^2 \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \mathbf{p} \quad (3.3)$$

En utilisant, le tenseur de Green et en notant $\mathbf{u} \equiv \frac{\mathbf{p}}{|\mathbf{p}|}$ la direction du dipôle \mathbf{p} , cette puissance s'écrit :

$$P = \frac{\mu_0 \omega^3}{2} |\mathbf{p}|^2 \Im [\mathbf{u} \cdot \mathbf{G}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) \mathbf{u}] \quad (3.4)$$

Cette expression est valable quel que soit le confinement électromagnétique du dipôle. Dans le cas d'un dipôle isolé, le tenseur de Green peut être explicité. Cela permet de retrouver la puissance rayonnée dans le cas de la diffusion de Rayleigh :

$$P_0 = \frac{\mu_0}{12\pi c} \omega^4 |\mathbf{p}|^2 \quad (3.5)$$

Dans une cavité optique de volume V seuls certains modes électromagnétiques existent. En cavité, le dipôle émet dans les modes de champ \mathbf{E}_m . Le vecteur propre $\mathbf{e}_m(\mathbf{r})$ et la pulsation propre ω_m du mode m vérifient les relations :

$$\begin{cases} \Delta \mathbf{e}_m(\mathbf{r}) - \left(\frac{\omega_m}{c}\right)^2 \mathbf{e}_m(\mathbf{r}) = 0 \\ \int_V \mathbf{e}_m(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{e}_l^*(\mathbf{r}) d^3r = \delta_{ml} \quad \forall l \neq p \end{cases} \quad (3.6)$$

Ainsi, en notant Q_m le facteur de qualité¹ prenant en compte la dissipation du mode m , le tenseur de Green du champ dans la cavité, s'écrit [154] :

$$\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \sum_m c^2 \frac{\mathbf{e}_m^*(\mathbf{r}') \times \mathbf{e}_m(\mathbf{r})}{\omega_m^2 - \omega^2 - i \frac{\omega \omega_m}{Q_m}} \quad (3.7)$$

Il est possible d'introduire une densité locale de modes électromagnétiques $\rho_{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \equiv \sum_m |\mathbf{e}_m(\mathbf{r})|^2 \delta(\omega - \omega_m)$ décrivant le nombre d'états propres accessibles pondérés par la norme au carré de leurs vecteurs propres associés [155]. $|\mathbf{e}_m(\mathbf{r})|^2$ est homogène à l'inverse d'un volume, il est donc possible de définir l'étendue du mode spatial m par le volume de mode effectif V_m défini comme :

$$V_m = \frac{1}{\max_{\mathbf{r}} (|\mathbf{e}_m(\mathbf{r})|^2)} \quad (3.8)$$

La densité locale de mode $\rho_{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega)$ se réécrit $\rho_{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_m \frac{1}{V_m} \frac{|\mathbf{e}_m(\mathbf{r})|^2}{\max(|\mathbf{e}_m|^2)} \delta(\omega - \omega_m)$ où le facteur $\frac{|\mathbf{e}_m(\mathbf{r})|^2}{\max(|\mathbf{e}_m|^2)}$ quantifie le recouvrement avec le mode m en \mathbf{r} . Elle s'exprime aussi à partir du tenseur de Green comme suit [155] :

1. Dans le cas d'une cavité imparfaite la relation d'orthogonalité 3.6 n'est plus vérifiée. Il faudrait alors introduire des modes quasi-normaux [153] ce qui complexifie significativement le modèle. Q_m est donc considéré suffisamment élevé pour que le champ soit négligeable en dehors de la cavité.

3.1. COUPLAGE ÉMETTEUR/CAVITÉ

$$\rho_{\text{loc}}(\mathbf{r}, \omega) \equiv \frac{2\omega}{\pi c^2} \mathfrak{Im} [\text{Tr}_m \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)] \quad (3.9)$$

Ainsi, la puissance P rayonnée par le dipôle s'exprime en fonction de la projection de cette densité locale de modes sur la position du dipôle :

$$P = \frac{\pi\omega^2}{4\epsilon_0} |\mathbf{p}|^2 \rho_{\text{loc},u}(\mathbf{r}_0, \omega) \quad (3.10)$$

D'après les relations 3.4 et 3.7 et en supposant que le dipôle n'est résonant qu'avec le mode m , la puissance rayonnée par le dipôle en cavité vaut :

$$P_{\text{cav}} = \frac{\mu_0\omega}{2} c^2 |\mathbf{p}|^2 Q_m \frac{1}{V_m} \frac{|e_m(\mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{u}|^2}{\max(|e_m|^2)} \frac{1}{1 + \left(2Q_m \frac{\omega - \omega_m}{\omega}\right)^2} \quad (3.11)$$

Par la suite, le désaccord spectral entre l'émetteur et la cavité est noté $\delta \equiv \omega_m - \omega$.

L'expression de P_{cav} permet de comparer l'émission d'un dipôle en espace libre et celle en cavité en exprimant le rapport des puissances émises sous la forme :

$$\frac{P_{\text{cav}}}{P_0} = \underbrace{\frac{3}{4\pi^2} Q_m \frac{\lambda^3}{V_m}}_{\text{propre à la cavité}} \underbrace{\frac{|e_m(\mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{u}|^2}{\max(|e_m|^2)}}_{\text{recouvrement spatial}} \underbrace{\frac{1}{1 + \left(2Q_m \frac{\delta}{\omega}\right)^2}}_{\text{recouvrement spectral}} \quad (3.12)$$

Si $\frac{P_{\text{cav}}}{P_0} > 1$, la puissance émise par le dipôle est exacerbée en cavité. Cela nécessite un bon recouvrement entre le mode de cavité et le dipôle. Si le recouvrement est maximal :

- Le dipôle est placé à un maximum de champ et orienté parallèlement à ce dernier, $\frac{|e_m(\mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{u}|^2}{\max(|e_m|^2)} = 1$.
- Le dipôle émet à une pulsation ω égale à la pulsation propre ω_m du mode p ($\delta = 0$), $\frac{1}{1 + \left(2Q_m \frac{\delta}{\omega}\right)^2} = 1$. L'hypothèse que le dipôle ne se couple qu'à un mode unique peut se reformuler par $Q_l \frac{\omega - \omega_l}{\omega} \gg 1$ pour tout $l \neq m$.
- Le rapport des puissances rayonnées en cavité et en espace libre par le dipôle vaut $\frac{P_{\text{cav}}}{P_0} = \frac{3}{4\pi^2} \lambda^3 \frac{Q_m}{V_m}$. Ce rapport ne dépend que des propriétés de la cavité, il est appelé facteur de Purcell [33].

En prenant en compte un milieu d'indice n et un seul mode de cavité accessible, le facteur de Purcell se note² :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} Q_{\text{cav}} \frac{(\lambda/n)^3}{V_{\text{eff}}} \quad (3.13)$$

2. Le volume de mode V_{eff} est aussi modifié lorsque $n > 1$ car la permittivité ϵ apparaît dans la définition générale des vecteurs propres e_m (voir équation 3.6).

Ainsi, pour augmenter la puissance émise d'un dipôle, il faut le coupler à un mode de cavité de petit volume et de grand facteur de qualité Q_{cav} . Notons que ce raisonnement n'est valable que dans le cas où l'émission du dipôle peut être considérée monochromatique par rapport à la largeur spectrale $\frac{\omega}{Q_{\text{cav}}}$ du mode de cavité. Plus généralement, l'émetteur et la cavité ont des rôles symétriques et sont analogues à deux oscillateurs RLC résonants à $\omega_{\text{ém}}$ et ω_{cav} et de facteurs de qualité $Q_{\text{ém}}$ et Q_{cav} comme développés dans l'annexe B.1. Cette analogie met aussi en relief un taux d'échange $g \equiv \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\alpha_0}{V_{\text{eff}}}}$ entre les deux oscillateurs où α_0 est la constante caractéristique définissant la polarisabilité de l'émetteur [147]. Ainsi, si $g \gg \frac{\omega_{\text{ém}}}{Q_{\text{ém}}}, \frac{\omega_{\text{cav}}}{Q_{\text{cav}}}$, l'énergie peut être échangée plusieurs fois entre l'émetteur et la cavité avant d'être dissipée. Il s'agit du régime de couplage fort où l'émetteur modifie significativement la transmission de la cavité. Dans le cadre de cette thèse, l'étude de l'interaction entre un émetteur et la cavité se limite au couplage faible : l'émetteur est considéré comme une perturbation.

L'expression du facteur de Purcell 3.13 suppose que $Q_{\text{ém}} \gg Q_{\text{cav}}$ ce qui n'est, le plus souvent, pas le cas en matière condensée. La généralisation de la définition du facteur de Purcell pour un émetteur élargi spectralement par des mécanismes déphasants fait l'objet de la partie 3.1.2.2. En outre, cette étude suppose que les modes de cavité ne sont pas modifiés par la présence de l'émetteur (couplage faible). Les conditions nécessaires à cette hypothèse sont développées dans la partie suivante.

Point de vue quantique Pour plus de simplicité, l'émetteur est assimilé à un système à deux niveaux. Lorsque le système est dans un état excité, il peut retourner dans son état fondamental en l'absence d'excitation au bout d'un temps $\tau_{\text{ém}}$ appelé temps de vie. Dans ce cadre, le taux d'émission $\gamma \equiv 1/\tau_{\text{ém}}$ est obtenu en calculant le rapport de la puissance rayonnée par un quantum d'émission, $\gamma = \frac{P}{\hbar\omega_{\text{ém}}}$. Le facteur de Purcell s'obtient en calculant le rapport des taux d'émission en cavité et en espace libre, $F_p = \frac{\gamma_{\text{cav}}}{\gamma}$.

Les pertes de la cavité optique peuvent aussi être décrites par un temps de vie τ_{cav} proportionnel au facteur de qualité Q_{cav} ($\tau_{\text{cav}} = \frac{Q_{\text{cav}}}{\omega}$). Le taux de photons sortant de la cavité optique est noté $\kappa = \frac{1}{\tau_{\text{cav}}}$. Quant au volume de mode effectif V_{eff} , il quantifie la force du champ électrique par photon pour le mode de cavité. En effet, en considérant les fluctuations électromagnétiques du vide, le champ électrique vérifie :

$$\frac{1}{2} \hbar\omega = \int \frac{1}{2} \left(\epsilon_0 E_{\text{vide}}^2 + \frac{B_{\text{vide}}^2}{\mu_0} \right) dV = 2 \int \frac{1}{2} \epsilon_0 E_{\text{vide}}^2 dV \quad (3.14)$$

Cela donne une expression du champ électrique du vide :

$$E_{\text{vide}} = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V_{\text{eff}}}} \quad (3.15)$$

Ainsi, le volume effectif peut être vu comme une normalisation de l'énergie du vide $\frac{1}{2} \hbar\omega$. Comme le facteur de Purcell est défini pour un émetteur placé à un maximum

3.1. COUPLAGE ÉMETTEUR/CAVITÉ

du champ en cavité, une définition plus générale du volume de mode s'écrit :

$$V_{\text{eff}} \equiv \frac{\int d^3\mathbf{r} |n(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r})|^2}{\max(|n(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r})|^2)} \quad (3.16)$$

Cette définition est cohérente avec celle donnée équation 3.8.

En outre, d'un point de vue quantique, le moment dipolaire est associé à la transition entre deux états. Il dépend de la différence de répartitions des charges entre deux orbitales et décrit comment le système à deux niveaux interagit avec une onde électromagnétique. L'état fondamental de l'émetteur est noté $|f\rangle$ et l'état excité $|e\rangle$. Le dipôle μ de la transition vérifie :

$$\mu = |\langle e | e \hat{\mathbf{r}} | f \rangle| \quad (3.17)$$

Cette grandeur permet d'exprimer le taux d'émission en espace libre γ à partir de la puissance rayonnée définie dans l'équation 3.5 :

$$\gamma = \frac{\mu^2 \omega^3}{3\pi \epsilon_0 \hbar c^3} \quad (3.18)$$

Le lien avec la polarisabilité semi-classique s'exprime comme suit :

$$\alpha = \frac{\overbrace{e^2}^{\alpha_0}}{m_e} f \frac{1}{\omega_{\text{ém}}^2 - \omega^2 - i \frac{\omega \omega_{\text{ém}}}{Q_{\text{ém}}}} \quad \text{où } f = 2m_e \frac{\omega}{\hbar} \mu^2 \quad (3.19)$$

f est la force d'oscillateur de la transition. En notant $|0\rangle$ l'état fondamental de la cavité (pas de photon) et $|1\rangle$ son état excité (un photon), l'opérateur de champ $\hat{\mathbf{E}}$ de vecteur d'onde k s'écrit :

$$\hat{\mathbf{E}} = iE_{\text{vide}} \left(e^{i(kz-\omega t)} |0\rangle\langle 1| - e^{-i(kz-\omega t)} |1\rangle\langle 0| \right) \quad (3.20)$$

Donc le taux de couplage entre l'émetteur et le champ en cavité vaut :

$$g = \left| \langle e, 0 | \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{E}}{\hbar} | f, 1 \rangle \right| = \frac{\mu E_{\text{vide}}}{\hbar} = \frac{\mu}{\hbar} \sqrt{\frac{\hbar \omega}{2\epsilon_0 V_{\text{eff}}}} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\alpha_0}{V}} \quad (3.21)$$

g est connu sous le nom de fréquence de Rabi et s'identifie au taux de couplage établi dans le modèle classique de l'annexe B.1. Les différents régimes de couplage sont résumés figure 3.2.

En utilisant les grandeurs définies dans cette partie, le facteur de Purcell peut être réécrit de la manière suivante :

$$F_p = \frac{4g^2}{\kappa \gamma} \quad (3.22)$$

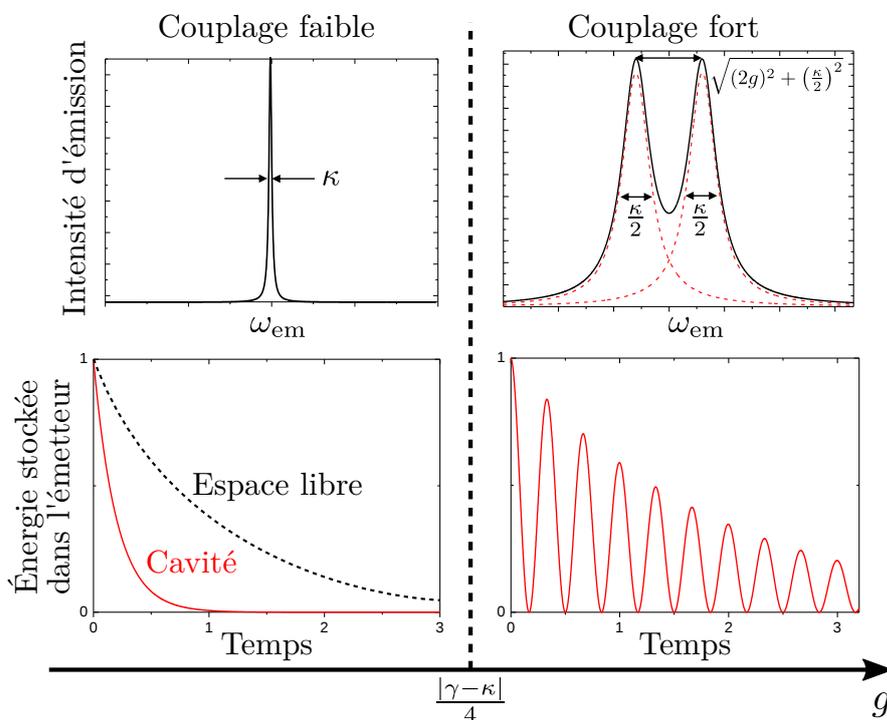


FIGURE 3.2 – Comportement spectral (en haut) et temporel (en bas) d’un émetteur couplé à une cavité dans les régimes de couplages faible (à gauche) et fort (à droite). Dans le régime de couplage faible, il n’y a qu’une seule énergie d’émission possible. La cavité peut être interprétée comme un canal de dissipation supplémentaire : le temps de vie de l’émetteur diminue. Dans le régime de couplage fort, deux énergies d’émission sont possibles et séparées de $2g$. L’énergie est échangée plusieurs fois entre la cavité et l’émetteur avant de relaxer, des oscillations de Rabi apparaissent. Figure adaptée de [156].

Les outils définis dans cette partie permettent de décrire qualitativement les systèmes de physique atomique bénéficiant du couplage entre une transition atomique et une cavité optique.

3.1.1.2 Expériences en physique atomique

Si le mode de cavité présente un bon recouvrement spatial et spectral avec l’émetteur, un dispositif expérimental doit maximiser le facteur de qualité de la cavité Q_{cav} et minimiser son volume de mode normalisé V_{eff}/λ^3 pour exacerber l’émission spontanée. Dans le domaine de longueurs d’onde visible ou proche infra-rouge, il faut donc miniaturiser la cavité jusqu’à quelques micromètres. Ensuite, le régime de couplage est estimé en comparant le taux d’échange g aux taux de dissipation γ et κ .

Les premières expériences d’électrodynamique quantique en cavité (CQED, *Cavity Quantum Electrodynamics*) ont été réalisées par le groupe de Serge Haroche en

1983 [157] sur des atomes de Rydberg en cavité micro-ondes. L'accélération de l'émission spontanée dans le domaine optique a été démontrée 4 ans plus tard dans l'équipe de Paolo Mataloni [158]. La mesure de l'émission spontanée était réalisée sur un flux de colorant entre deux miroirs diélectriques en configuration Fabry-Pérot à une longueur d'onde de $0,6\ \mu\text{m}$. Bien que la longueur de cavité ait été partiellement stabilisée par la tension de surface avec le colorant [158], l'émission spontanée est accélérée 100 fois moins que dans le cas des atomes de Rydberg. Outre le problème de maintien à résonance, l'effet de cavité est moins significatif car son facteur de qualité reste assez faible ($Q_{\text{cav}} \approx 15$).

Pour s'affranchir des fluctuations des fréquences de résonance et atteindre de grands facteurs de qualité, il est possible de fabriquer des micro-cavités fermées. Ces résonateurs sont formés de micro-sphères ou de micro-tores de silice dans lesquels la lumière est piégée par réflexion totale interne. Des images de microscopie électronique à balayage (SEM, *Scanning Electron Microscopy*) typiques d'une micro-sphère et d'un micro-tore sont présentées figure 3.3. Les modes électromagnétiques dans ce type de cavité sont appelés *modes de galerie* en référence à la galerie des murmures de la cathédrale Saint-Paul de Londres dans laquelle un mot chuchoté d'un côté s'entend distinctement du côté opposé.

En guise d'exemple, les micro-sphères réalisées avec la même technique que celle visible figure 3.3 atteignent des diamètres entre 40 et $60\ \mu\text{m}$ ce qui donne un volume de mode $V_{\text{eff}} \approx 100\ \mu\text{m}^3$ [159]. Quant aux facteurs de qualité, ils sont en général supérieurs à 10^8 [160, 159, 161].



FIGURE 3.3 – À gauche : Image SEM d'une micro-sphère en silice de $56\ \mu\text{m}$ de diamètre. Tirée de [159]. À droite : Image SEM d'une section au FIB d'un micro-tore de $14\ \mu\text{m}$ de diamètre. Tirée de [161].

Les facteurs de Purcell atteints avec de telles structures peuvent être remarquablement grands. Cependant, le couplage avec un émetteur externe est nécessairement évanescent puisque le champ est piégé par réflexion totale interne. Cela rend le dispositif soit peu efficace (au maximum 30% de la lumière couplée dans la cavité [162, 159]) soit fragile et sensible aux vibrations [163].

Parallèlement au développement de ces micro-cavités, la miniaturisation et la stabilité des cavités Fabry-Pérot a lui aussi progressé. Cela permet en 2000 la première observation de la trajectoire d'atomes froids uniques via un « microscope atomique »

CHAPITRE 3. ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE CAVITÉ OPTIQUE

utilisant la sensibilité d'une cavité optique [164]. La figure 3.4 donne une vue d'artiste de ce dispositif.

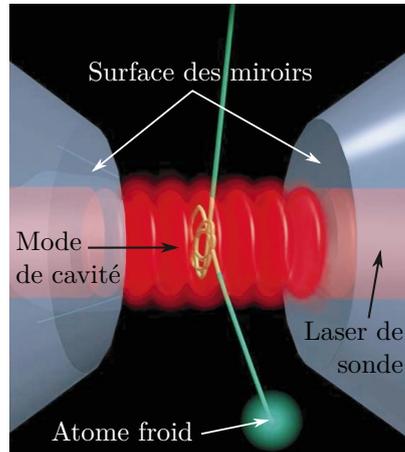


FIGURE 3.4 – Des atomes de césium refroidis dans un piège magnéto-optiques sont lâchés dans une cavité Fabry-Pérot. Le mouvement d'un seul atome couplé avec le mode de cavité crée des variations de transmission suffisantes pour qu'elles soient mesurées. Tiré de [165].

Les techniques d'usinage des micro-tores sur la pointe de fibres optiques a permis la fabrication de micro-cavités Fabry-Pérot [36]. Des dépressions concaves de rayon de courbure micrométrique sont creusées dans la silice composant la fibre et sont recouvertes par un empilement de couches diélectriques pour former les micro-miroirs utilisés pour ces cavités. Ces dernières sont celles utilisées dans cette thèse et la partie 3.2 leur est consacrée. Dans le cadre des atomes froids, elles sont conçues pour atteindre des facteurs de qualité de l'ordre de 7×10^6 et autorisent un facteur de Purcell³ maximal de 560 [166, 167]. Elles sont destinées aussi bien à l'étude de l'intrication entre plusieurs particules qu'à la fabrication d'horloges atomiques sur puce, les micro-cavités de ces deux dispositifs sont présentées figure 3.5.

3. Dans ce type d'expérience, la figure de mérite est appelée coopérativité et est définie comme $\mathcal{C} \equiv \frac{g^2}{2\kappa\gamma}$ d'où, d'après la relation 3.22, $F_p = 8\mathcal{C}$.

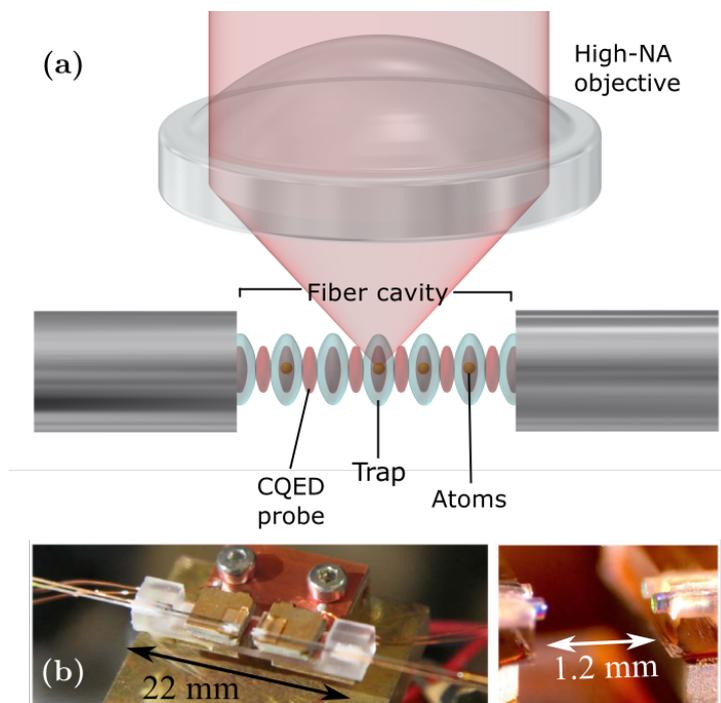


FIGURE 3.5 – (a) Schéma de concept d'un réseau unidimensionnel d'atomes froids de rubidium dans une micro-cavité fibrée. Les atomes sont couplés fortement à la cavité collectivement tout en restant détectables et adressables individuellement. Tiré de [167] (b) Longues micro-cavités fibrées d'une horloge à atomes piégés sur puce. Tiré de [166].

Cette partie a défini les notions de facteur de Purcell et de recouvrements spatial et spectral. Elle souligne l'analogie entre l'émission en cavité et le couplage de deux oscillateurs ce qui révèle l'existence de deux régimes distincts : le couplage faible et le couplage fort. Dans le cas de la physique atomique, le facteur de qualité de la cavité est toujours inférieur au facteur de qualité de l'émission d'une transition atomique ($\kappa > \gamma$). Le régime de couplage fort apparaît lorsque $g \gg \kappa$, c'est-à-dire qu'un photon peut subir une succession d'émission et de réabsorption par l'émetteur avant d'être transmis hors de la cavité. Dans le cadre du couplage faible et en supposant un parfait recouvrement de l'émetteur avec le mode de cavité, le taux d'émission spontanée est proportionnel à Q_{cav}/V_{eff} . Ce n'est plus nécessairement le cas pour un émetteur à l'état solide.

3.1.2 Atome artificiel en matière condensée

Travailler directement avec des atomes nécessite des dispositifs très complexes afin de les piéger et les manipuler. Pour s'en affranchir, des systèmes dont la structure électronique est comparable à celle d'un atome peuvent être fabriqués à l'état solide. Dans un matériau semi-conducteur, un électron peut être excité vers la bande de

CHAPITRE 3. ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE CAVITÉ OPTIQUE

conduction en laissant un trou dans la bande de valence. Cet électron et ce trou forment un système hydrogénoïde appelé exciton et peuvent se recombiner en émettant un photon. Si cet exciton est localisé, il peut être modélisé par un *atome artificiel*. En effet, comme rappelé figure 3.6, un confinement modifie la densité d'état et un défaut localisé (structure 0D) au sein d'une matrice possède des niveaux discrets d'énergie. Comme dans la partie 3.1.1.1, seuls deux de ces niveaux sont considérés : le niveau fondamental $|f\rangle$ et le niveau excité $|e\rangle$.

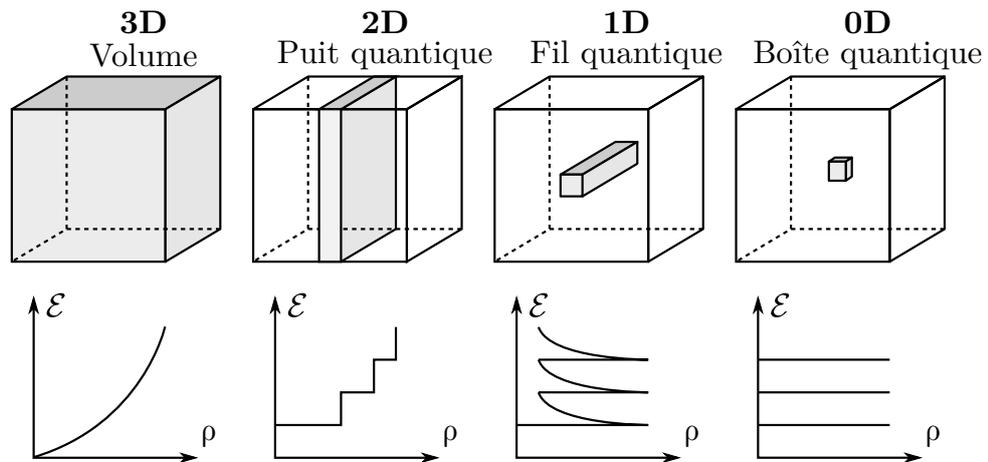


FIGURE 3.6 – Densité d'états électroniques en fonction du confinement de la structure. Adapté de [168].

Toutefois l'interaction de l'émetteur avec son environnement implique des différences notables avec un atome isolé :

- Les photons émis peuvent rester piégés dans la matrice par réflexion totale sur les interfaces avec l'extérieur. Il faut prendre en compte une efficacité d'extraction des photons dans le rendement de collection.
- Le couplage avec la matrice introduit des mécanismes de désexcitations par phonons. Cela a pour effet de diminuer le temps de vie de l'état excité en introduisant un taux de recombinaison non radiatif γ^{NR} . γ_{cav} reste défini comme l'inverse du temps de vie de l'émetteur en cavité mais, étant donné que l'effet Purcell n'affecte que le taux radiatif, il est important d'explicitier sa définition dans ce contexte. Ces grandeurs sont décrites par le schéma 3.7 et les équations 3.23.

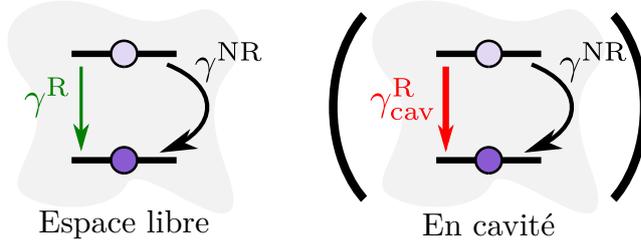


FIGURE 3.7 – Émission spontanée en présence d'un mécanisme de désexcitation non radiative de taux γ^{NR} . γ^{R} et $\gamma_{\text{cav}}^{\text{R}}$ désignent des grandeurs radiatives et le taux de désexcitation de l'émetteur en cavité vaut $\gamma_{\text{cav}} = \gamma_{\text{cav}}^{\text{R}} + \gamma^{\text{NR}}$.

$$\left\{ \begin{array}{l} \gamma \equiv \frac{1}{\tau_{\text{lib}}} = \gamma^{\text{R}} + \gamma^{\text{NR}} \quad \text{en espace libre} \\ \gamma_{\text{cav}} \equiv \frac{1}{\tau_{\text{cav}}} = \underbrace{(1 + F_p)\gamma^{\text{R}}}_{\gamma_{\text{cav}}^{\text{R}}} + \gamma^{\text{NR}} \quad \text{en cavité} \end{array} \right. \quad (3.23)$$

En notant $\eta \equiv \frac{\gamma^{\text{R}}}{\gamma}$ le rendement quantique de l'émetteur, le facteur de Purcell s'exprime ainsi [169] :

$$F_p = \frac{\gamma_{\text{cav}} - \gamma}{\gamma^{\text{R}}} = \frac{1}{\eta} \left(\frac{\gamma_{\text{cav}}}{\gamma} - 1 \right) \quad (3.24)$$

- Les fluctuations de l'environnement de l'exciton impliquent une décohérence et une relaxation de phase qui élargissent spectralement l'émission. De ce fait, le facteur de qualité de l'émetteur $Q_{\text{ém}}$ peut être significativement inférieur à celui du mode de cavité Q_{cav} . Puisque ces fluctuations sont d'origine quantique, il faut traiter le problème avec un nouveau formalisme en introduisant le taux de déphasage pur γ^* . C'est l'objet de la partie 3.1.2.2.

Le phénomène de recombinaison non radiative et la diffusion des photons hors du mode de collection à cause des réflexions multiples diminuent le rendement de la source. Cependant, l'effet Purcell tend à rendre négligeable ces effets indésirables. Plus le facteur de Purcell est grand, plus les photons émis dans le mode de cavité sont collectés facilement et plus le rendement quantique de l'émetteur en cavité η_{cav} s'approche de 1. Tant que la probabilité de réabsorption reste faible, il vaut $\eta_{\text{cav}} = \frac{(1+F_p)\gamma^{\text{R}}}{(1+F_p)\gamma^{\text{R}} + \gamma^{\text{NR}}} = \frac{1+F_p}{1/\eta + F_p} \underset{F_p \gg 1}{\approx} 1 - \left(\frac{1}{\eta} - 1\right) \frac{1}{F_p}$.

Le déphasage pur, tout comme le taux de recombinaison non radiatif, n'est pas modifié par la cavité. Cependant, contrairement à la recombinaison non radiative, le déphasage pur n'est pas forcément un inconvénient car il autorise une certaine accordabilité spectrale de la source [38] comme explicité partie 3.1.2.1.

Dans certains cas, l'absorption et l'émission assistées par phonons sont suffisamment importantes pour que le couplage aux phonons ne puisse plus être traité comme une perturbation. L'exciton habillé des modes de phonons doit être considéré comme une quasi-particule : le polaron. Ce modèle est résumé dans l'annexe B.2.

3.1.2.1 Modélisation du déphasage pur

Pour décrire l'interaction d'un émetteur avec une cavité optique, on se place dans le cadre du formalisme de Jaynes et Cummings [170] en se limitant à une seule excitation dans le système (il y a au plus un photon dans la cavité). Les opérateurs de création et d'annihilation sont notés \hat{a}^\dagger et \hat{a} pour un photon et $\hat{\sigma}_+$ et $\hat{\sigma}_-$ pour un état excité. Le hamiltonien du système s'écrit :

$$\mathcal{H} = \hbar\omega_{\text{ém}}\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- + \hbar\omega_{\text{cav}}\hat{a}^\dagger\hat{a} + i\hbar g (\hat{a}^\dagger\hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+\hat{a}) \quad (3.25)$$

Pour prendre en compte la dissipation, les taux de relaxation γ pour l'émetteur et κ pour la cavité sont introduits et l'évolution du système est dictée par l'équation de Lindblad :

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar}[\mathcal{H}, \rho] + \mathcal{L}(\sqrt{\gamma}\hat{\sigma}_-) + \mathcal{L}(\sqrt{\kappa}\hat{a}) \quad (3.26)$$

où l'opérateur \mathcal{L} est défini tel que $\mathcal{L}(\hat{c}) \equiv \hat{c}\rho\hat{c}^\dagger - \frac{1}{2}\{\hat{c}^\dagger\hat{c}, \rho\}$.

Taux de déphasage pur Le taux de déphasage pur γ^* provient de mécanismes assistés par phonons [171, 28] ou de diffusion spectrale à des échelles de temps inférieures au temps de vie de l'émetteur [172, 103]. Ce taux de déphasage domine en général la largeur spectrale des émetteurs à l'état solide. À température ambiante, γ^* est plus grand que γ de 3 à 6 ordres de grandeurs [173]. Quelques cas caractéristiques sont présentés dans le tableau 3.1.2.1.

TABLE 3.1 – Comparaison du taux de relaxation de l'état excité et du taux de déphasage pur pour différents types d'émetteurs.

	Centres NV	Boîtes quantiques InGaAs	TMDC ⁴ WSe ₂	CNT dopés	CNT suspendus	CNT en matrice
γ (μeV)	~0,05 [174]	~0,5 [175]	~0,5 [176]	1-9 [31]	0,1-0,7 [84]	2-12 [84, 40]
γ^* (μeV)	~10 [177]	~50 [175]	~500 [176]	~300 [96]	<40 [84]	200-2000 [178, 40]

D'après ces exemples, le facteur de qualité de l'émetteur vérifie :

$$Q_{\text{ém}} = \frac{\omega_{\text{ém}}}{\gamma + \gamma^*} \approx \frac{\omega_{\text{ém}}}{\gamma^*} \quad (3.27)$$

Cette partie reprend le travail de Auffèves et collaborateurs [38, 34] pour décrire le couplage entre un système à deux niveaux soumis à du déphasage pur et une cavité. Le couplage aux phonons est négligé dans ce modèle : l'émission et l'absorption sont

4. TMDC : *Transition Metal DiChalcogenide*.

supposées lorentziennes de largeur $\gamma + \gamma^*$. Les paramètres du système sont résumés figure 3.8.

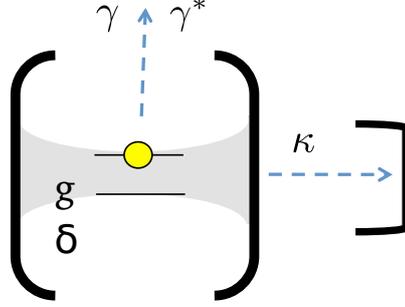


FIGURE 3.8 – Schéma de principe d'un émetteur de temps de vie $\frac{1}{\gamma}$ soumis au taux de déphasage pur γ^* et couplé à une cavité avec un taux g . Les photons du mode de cavité ont un temps de vie de $\frac{1}{\kappa}$ et leur pulsation est désaccordée de $\delta = \omega_{\text{cav}} - \omega_{\text{ém}}$ avec l'émetteur. [34]

Le déphasage pur ne change pas le nombre d'excitations du système, son effet est modélisé par le lindbladien $\sqrt{\gamma^*} \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- = \frac{\sqrt{\gamma^*}}{2} (\hat{\sigma}_z + \mathbb{1})$ où $\hat{\sigma}_z$ est la matrice de Pauli $\begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}$ dans la base $(|0, e\rangle, |1, f\rangle)$ où f est l'état fondamental de l'atome artificiel, e l'état excité et 0 et 1 désignent le nombre de photons dans la cavité [34]. L'équation de Lindblad devient :

$$\dot{\rho} = \frac{1}{i\hbar} [\mathcal{H}, \rho] + \mathcal{L} \left(\underbrace{\sqrt{\gamma} \hat{\sigma}_-}_{\hat{c}_1} \right) + \mathcal{L} \left(\underbrace{\sqrt{\kappa} \hat{a}}_{\hat{c}_2} \right) + \mathcal{L} \left(\underbrace{\sqrt{\gamma^*} \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-}_{\hat{c}_3} \right) \quad (3.28)$$

Les valeurs moyennes des observables $\hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-$, $\hat{a}^\dagger \hat{a}$, $\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_-$ et $\hat{\sigma}_+ \hat{a}$ satisfont l'équation suivante :

$$\dot{O} = MO \quad \text{où } M = \begin{bmatrix} -\gamma & 0 & -g & -g \\ 0 & -\kappa & g & g \\ g & -g & -\frac{\gamma_{\text{tot}}}{2} - i\delta & 0 \\ g & -g & 0 & -\frac{\gamma_{\text{tot}}}{2} + i\delta \end{bmatrix} \quad \text{et } O = \begin{bmatrix} \langle \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \rangle \\ \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \\ \langle \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle \\ \langle \hat{\sigma}_+ \hat{a} \rangle \end{bmatrix} \quad (3.29)$$

Les cohérences $\langle \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle$ et $\langle \hat{\sigma}_+ \hat{a} \rangle$ décroissent à un taux $\frac{\gamma_{\text{tot}}}{2}$. γ_{tot} est le déphasage total qui inclut le déphasage pur :

$$\gamma_{\text{tot}} \equiv \kappa + \gamma + \gamma^* \quad (3.30)$$

La matrice M est diagonalisable et l'évolution de l'excitation de l'émetteur $\langle \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \rangle$ et celle de la cavité $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$ sont décrites par les valeurs propres $-(\gamma + R)$ et $-(\kappa + R)$ où R est défini tel que :

$$R = \frac{4g^2}{\gamma_{\text{tot}} \left(1 + \left(\frac{2\delta}{\gamma_{\text{tot}}}\right)^2\right)} \quad (3.31)$$

R est interprété comme le couplage effectif entre la cavité et l'émetteur [34]. Comme schématisé figure 3.9, l'émetteur (resp. la cavité) peut soit se désexciter dans le vide à une probabilité $\frac{\gamma}{\gamma+R}$ (resp. $\frac{\kappa}{\kappa+R}$) soit exciter la cavité (resp. l'émetteur) à une probabilité $\frac{R}{\gamma+R}$ (resp. $\frac{R}{\kappa+R}$).

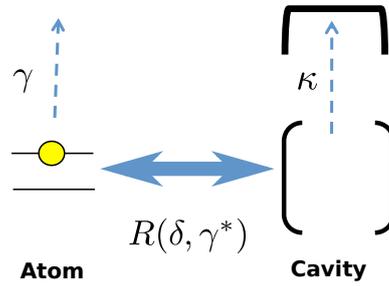


FIGURE 3.9 – Le système est équivalent à un émetteur interagissant avec un taux de couplage R avec la cavité. L'émetteur et la cavité conservent leurs taux de relaxation respectifs γ et κ . Tiré de [34].

En introduisant, le profil lorentzien de la transmission du mode de cavité normalisé à 1 (voir partie 3.2.1.1),

$$T_{\text{cav}}(\omega - \omega_{\text{cav}}) = \frac{\frac{2}{\pi\kappa}}{1 + \left(2\frac{\omega - \omega_{\text{cav}}}{\kappa}\right)^2} \quad (3.32)$$

et $S(\omega)$ le spectre d'émission normalisé tel que $\int S(\omega)d\omega \equiv 2\pi$, le couplage effectif R peut s'écrire sous la forme⁵ :

$$R = g^2 \tilde{S}(\omega_{\text{cav}}) \quad \text{où } \tilde{S} = (S * T_{\text{cav}}) \quad (3.33)$$

où $*$ est le symbole de convolution. Cette expression du couplage est utile pour comprendre les expressions de l'efficacité présentées dans la partie suivante.

3.1.2.2 Facteur de Purcell généralisé et efficacité

L'émetteur se désexcite à un taux $\gamma + R$ or, γ comprend une partie radiative γ^{R} et une partie non radiative γ^{NR} . L'excitation transmise à la cavité est par définition radiative donc le taux d'émission de l'émetteur en cavité est $\gamma^{\text{R}} + R = \gamma^{\text{R}} \left(1 + \frac{R}{\gamma^{\text{R}}}\right)$.

5. La convolution de deux lorentziennes de largeur à mi-hauteur $\gamma + \gamma^*$ et κ donne une lorentzienne de largeur $\gamma_{\text{tot}} = \gamma + \gamma^* + \kappa$.

3.1. COUPLAGE ÉMETTEUR/CAVITÉ

Le facteur de Purcell est défini pour un désaccord δ nul (voir partie 3.1.1.1) donc sa généralisation en présence de déphasage pur s'écrit :

$$F_p^* = \frac{R(\delta = 0)}{\gamma R} = \frac{4g^2}{\gamma R \gamma_{\text{tot}}} \quad (3.34)$$

La généralisation du facteur de Purcell revient à remplacer κ par γ_{tot} dans la formule 3.22. Or, le facteur de qualité de l'émetteur soumis au déphasage pur γ^* vaut :

$$Q_{\text{ém}} = \frac{\omega_{\text{ém}}}{\gamma + \gamma^*} \quad (3.35)$$

Pour $\delta = 0$, $\omega_{\text{ém}} = \omega_{\text{cav}} = \omega_0$ donc il est possible de définir un facteur de qualité effectif Q_{eff} du système tel que :

$$\frac{1}{Q_{\text{eff}}} = \frac{1}{Q_{\text{cav}}} + \frac{1}{Q_{\text{ém}}} = \frac{\kappa + \gamma + \gamma^*}{\omega_0} \quad (3.36)$$

La généralisation du facteur de Purcell revient aussi à remplacer Q_{cav} par Q_{eff} dans la formule 3.13 :

$$F_p^* = \frac{3}{4\pi^2} Q_{\text{eff}} \frac{(\lambda/n)^3}{V_{\text{eff}}} \quad (3.37)$$

En considérant le système comme une source, seuls les photons sortant du mode de cavité considéré sont utiles. Les photons émis en dehors du mode de cavité collecté et la désexcitation non radiative constituent des pertes sèches. Ainsi, il est possible de définir une efficacité du dispositif β en ne considérant que les pertes utiles [179] :

$$\beta \equiv \kappa \int_0^\infty dt \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \quad (3.38)$$

Il est possible de calculer β avec la formule ci-dessus. Le résultat obtenu est équivalent à calculer la probabilité de sortie d'un photon de la cavité en supposant un quantum d'excitation à $t = 0$ dans la matière :

$$\begin{aligned} \beta &= \frac{R}{\gamma+R} \frac{\kappa}{\kappa+R} && \text{émission/transmission} \\ &+ \frac{R}{\gamma+R} \left(\frac{R}{\kappa+R} \frac{R}{\gamma+R} \right) \frac{\kappa}{\kappa+R} && \text{émission/absorption/émission/transmission} \\ &+ \frac{R}{\gamma+R} \left(\dots \right) \frac{\kappa}{\kappa+R} && \text{émission/.../transmission} \\ &= \frac{R}{\gamma+R} \frac{\kappa}{\kappa+R} \sum_{l=0}^{+\infty} \left(\frac{R}{\gamma+R} \frac{R}{\kappa+R} \right)^l = \frac{\frac{R\kappa}{R+\kappa}}{\gamma + \frac{R\kappa}{R+\kappa}} \end{aligned} \quad (3.39)$$

$\frac{R\kappa}{R+\kappa}$ est le taux avec le quel l'émetteur relaxe vers l'environnement à travers la cavité. Si $R < \kappa$, le couplage entre l'émetteur et la cavité est faible : la cavité apparaît comme une source de relaxation supplémentaire. Les résultats présentés dans cette

thèse vérifient toujours ce *régime de mauvaise cavité*.⁶

L'efficacité peut aussi s'exprimer à l'aide du spectre de l'émetteur S (voir formule 3.33) :

$$\beta = \frac{g^2 \kappa \tilde{S}(\omega_{\text{cav}})}{g^2 (\kappa + \gamma) \tilde{S}(\omega_{\text{cav}}) + \gamma \kappa} \quad (3.40)$$

Cette efficacité est bornée à très fort couplage par un processus de réabsorption non cohérent, cette limite théorique vaut :

$$\beta_{g \rightarrow \infty} = \frac{\kappa}{\kappa + \gamma} \quad (3.41)$$

L'efficacité 3.40 est symétrique autour de la pulsation centrale de l'émetteur $\omega_{\text{ém}}$ car R l'est aussi. Cependant, d'après le principe Franck-Condon, l'émission et l'absorption assistées par phonon (voir partie 1.2.2.2) n'ont pas la même probabilité. Le couplage effectif est différent de l'émetteur vers la cavité et de la cavité vers l'émetteur pour $\omega_{\text{cav}} \neq \omega_{\text{ém}}$. Pour inclure ces mécanismes, le hamiltonien de Jaynes-Cummings est modifié pour prendre en compte les modes de phonons. Ce modèle est développé dans l'annexe B.2. En notant, $S_{\text{émi}}$ le spectre d'émission et S_{abs} le spectre d'absorption, l'efficacité issue du modèle avec phonons s'écrit :

$$\beta = \frac{g^2 \kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}})}{g^2 (\kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}}) + \gamma \tilde{S}_{\text{abs}}(\omega_{\text{cav}})) + \gamma \kappa} \quad (3.42)$$

Cette partie généralise le facteur de Purcell à un émetteur à l'état solide, il est proportionnel au rapport $Q_{\text{eff}}/V_{\text{eff}}$ où Q_{eff} est un facteur de qualité effectif valant $(Q_{\text{cav}}^{-1} + Q_{\text{ém}}^{-1})^{-1}$. En pratique, pour la plupart des émetteurs $Q_{\text{eff}} \approx Q_{\text{ém}}$ ce qui limite l'effet Purcell. De plus, l'efficacité β de la source est exprimée dans un cas général prenant en compte l'interaction de l'émetteur avec les phonons. Cette formule est très utile pour comprendre l'émission d'un CNT en cavité dans la partie 5.2.2.

3.1.3 État de l'art expérimental

Cette partie dresse un état de l'art des sources de photons uniques existant à l'état solide. Elle décrit différentes géométries possibles pour confiner un champ à proximité d'un émetteur. Pour mettre en perspective l'intérêt des CNT, la partie 3.1.3.1 présente exclusivement des dispositifs utilisant d'autres types d'émetteurs. Le cas particulier des sources basées sur des CNT est développé dans la partie 3.1.3.2.

6. À l'inverse, si $R > \kappa$, l'énergie est transférée plus vite de l'émetteur vers la cavité qu'elle ne relaxe de la cavité vers l'environnement. Ce *régime de bonne cavité* n'implique pas forcément un échange cohérent entre l'émetteur et la cavité : le photon peut être stocké un laps de temps dans la cavité sans être réabsorbé.

3.1.3.1 Exemples de structures de confinement

Plusieurs types de nanostructures coexistent pour confiner un champ électromagnétique à proximité d'un atome artificiel. Elles se démarquent par les différents facteurs de qualités accessibles, leurs volumes de mode, leur accordabilité spectrale et spatiale ou la directionnalité de leur émission. L'émission d'une source de photons uniques doit être facilement collectée, avoir une bonne efficacité quantique, être accordable et d'une grande pureté spectrale.

Micro-disques Les micro-disques, des micro-cavités comparable aux micro-sphères et micro-tores présentés partie 3.1.1.2, sont aussi applicables au couplage avec des émetteurs à l'état solide. Ils sont fabriqués par gravure de manière à inclure une ou plusieurs boîtes quantiques à la nano-structure pour la coupler au mode de galerie. Une image SEM d'un de ces micro-disques contenant des boîtes quantique InAs est visible figure 3.10.

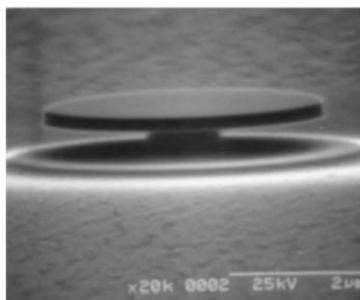


FIGURE 3.10 – Image SEM d'un micro-disque de $5\ \mu\text{m}$ de diamètre et sur un pied de $0,5\ \mu\text{m}$ gravé dans une couche de GaAs. Le disque mesure $200\ \text{nm}$ d'épaisseur et abrite un mode de galerie couplé avec une boîte quantique d'InAs. Tiré de [180].

Le micro-disque présenté figure 3.10 a un facteur de qualité de 6500 et atteint un facteur de Purcell de 6 [180]. Des micro-disques de diamètre beaucoup plus faible, autour de $2\ \mu\text{m}$, ont permis d'atteindre un facteur de Purcell de 155 [181]. Le couplage fort a été obtenu en 2005 sur ces sources [182]. Ce couplage était du même ordre de grandeur que la largeur d'émission ($200\ \mu\text{eV}$).

Le désavantage de ce type de structure reste le couplage du mode de galerie avec l'extérieur (l'émission est dans le plan du micro-disque). Il peut s'agir du couplage entre le mode de galerie et un émetteur externe ou bien entre le mode de galerie et le mode de collection dans le cas d'un émetteur interne.

Micro-piliers Le mode de cavité peut être confiné verticalement en empilant des couches diélectriques épitaxiées comme dans le cas des diodes laser émettant par la surface (VCSEL [183]). Une première alternance de couches diélectriques est déposée pour former un miroir de Bragg (voir partie 3.2.2.2), puis la couche contenant les émetteurs et enfin la cavité est refermée par un second miroir de Bragg. Les miroirs

sont choisis asymétriques pour privilégier une émission vers la surface et non vers le substrat. Le mode de cavité est confiné latéralement par gravure afin de former un pilier d'environ $1\ \mu\text{m}$ de diamètre. La position des boîtes quantiques étant aléatoire, la probabilité de graver un micro-pilier centré sur une boîte restait très faible jusqu'à ce qu'un procédé de gravure in-situ soit publié en 2008 [184]. Une image SEM d'un micro-pilier et une simulation de l'amplitude du champ électrique dans la cavité sont présentées figure 3.11.

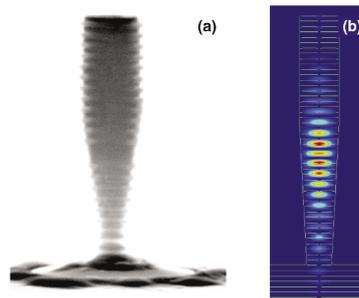


FIGURE 3.11 – (a) Image SEM d'un micro-pilier de $0,6\ \mu\text{m}$ de diamètre et de $4,2\ \mu\text{m}$ de hauteur. (b) Simulation de l'amplitude du champ électrique pour le mode fondamental de la cavité au centre du micro-pilier. [185]

La première accélération de l'émission spontanée ($F_p \sim 5$) d'un ensemble de boîtes quantiques a été démontrée en 1998 sur ce type de cavité [186]. Le plus petit volume de mode accessible est de l'ordre de $10(\lambda/n)^3$ ce qui a permis d'atteindre le couplage fort en 2004 [187]. Les micro-piliers sont contactables électriquement ce qui leur donne une certaine accordabilité par effet Stark, leur facteurs de qualité obtenus actuellement sont élevés ($Q_{\text{cav}} \sim 30000$) [188] et leur efficacité après collection dépasse 65% [189]. Ces micro-piliers sont devenus d'excellents candidats comme sources de photons uniques indiscernables ou intriqués pour des longueurs d'onde entre 800 nm et 1000 nm [190].

Cristaux photoniques Les cavités en micro-piliers sont destinées spécifiquement aux boîtes quantiques qui peuvent être épitaxiées en même temps que les miroirs de Bragg. Cependant, un dernier type de cavité monobloc peut être couplé à une plus large gamme d'émetteurs : les cavités à cristaux photoniques. De la même manière qu'un champ peut être confiné verticalement par un empilement de couches diélectriques, il peut être confiné latéralement par une structure périodique présentant de fortes variations d'indice de réfraction. Une telle structure, par exemple un réseau de trous comme sur la figure 3.12, peut interdire la propagation des modes électromagnétiques selon certaines directions. Ces cavités photoniques servent de substrat à l'émetteur et sont fabriquées sur une couche suspendue suffisamment fines (quelques centaines de nanomètres) pour confiner le champ verticalement grâce à des réflexions totales internes.

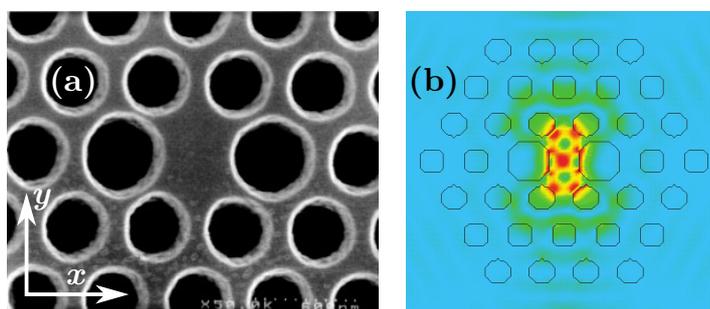


FIGURE 3.12 – (a) Vue de dessus d’un réseau hexagonal de trous réalisé sur une membrane d’InGaAsP de 220 nm d’épaisseur. Les petits trous ont un rayon de 180 nm et les grands de 240 nm. Le trou manquant au centre permet l’établissement d’un champ électromagnétique et forme la cavité photonique. Les grands trous de part et d’autre de la cavité lèvent la dégénérescence entre un champ électrique selon x ou selon y et rendent la cavité monomode (seul le champ selon y est autorisé). (b) Simulation de l’amplitude du champ électrique au centre de la membrane. L’emplacement du trou manquant correspond bien au lieu de plus fort champ. [191]

La position des trous est optimisée numériquement pour parvenir à des volumes de modes limités par diffraction de l’ordre de $(\lambda/n)^3$. Un volume aussi faible que $0,07 \mu\text{m}^3 (\sim 0,8(\lambda/n)^3)$ a été obtenu en conservant un facteur de qualité de 45000 [192]. Cependant, le couplage entre un émetteur et ce type de cavité n’est en général pas déterministe (comme pour les micro-piliers antérieurs à 2008) ce qui est d’autant plus problématique que le volume de mode est faible. Puisque le régime de couplage fort est caractérisé par une levée de dégénérescence, il a pu être identifié pour ces cavités dans le cas de boîtes quantiques dès 2004 [193] tandis que l’effet Purcell, qui demande une comparaison entre les temps de vie d’émetteur couplés et non couplés, n’a été démontré que l’année suivante ($F_p \sim 8$) [194]. En outre, le champ émis hors de la cavité reste peu directionnel et demande une collection de grande ouverture numérique.

À la différence des micro-piliers qui demandent l’épitaxie de deux matériaux pour faire les réflecteurs de Bragg, les cristaux photoniques ne demandent qu’une étape de gravure. Les atouts majeurs des cavités à cristaux photoniques sont donc d’être usinables sur la plupart des matériaux et de pouvoir être couplées à des émetteurs internes comme externes. En 2010, des centres NV ont été couplés de manière déterministe à des cristaux photoniques [195]. Une pointe AFM est utilisée pour positionner un cristal photonique en GaP à proximité des nano-cristaux de diamants dispersés en matrice de PMMA. Depuis peu, il est même possible de fabriquer ces cavités photoniques à partir de nitrure de bore, un substrat particulièrement propice aux émetteurs quantiques. [196].

Cavités plasmoniques Pour dépasser la limite de diffraction du volume de mode, il est possible d’utiliser le confinement du champ électromagnétique à la surface d’un conducteur. En effet, un champ électromagnétique peut se coupler aux charges

CHAPITRE 3. ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE CAVITÉ OPTIQUE

libres à la surface d'un métal et former une onde propagative localisée à l'interface métal/diélectrique, un plasmon polariton de surface. Les cavités exploitant ce type de confinement sont appelées cavités plasmoniques. En pratique, il s'agit d'approcher une nano-structure métallique, généralement en or ou en argent, d'un émetteur. Cependant une couche de diélectrique doit toujours être présente entre l'émetteur et le conducteur pour éviter la recombinaison non-radiative des excitons.

D'extrêmement faibles volumes de mode ont été obtenus pour ces cavités ($V_{\text{eff}} \sim 0,0003\lambda^3$) bien que leur facteur de qualité soit peu élevé ($Q_{\text{cav}} \sim 16$) [197]. Dans le contexte des cavités plasmoniques, le facteur de Purcell est défini comme le rapport du temps de vie en cavité sur celui en espace libre bien que la nano-structure métallique apporte des pertes. En effet, le champ électrique pénètre dans le conducteur sur la profondeur de peau, ce qui induit des pertes ohmiques [198]. Ainsi le facteur de Purcell calculé peut être très élevé même si l'efficacité radiative de la source reste faible. Par exemple, dans le cas d'un nano-cristal colloïdal CdSe/ZnS couplé avec une nano-particule d'or le facteur de Purcell est de 145, mais l'émission n'est augmentée que d'un facteur 8 [199]. Pour comparer ces dispositifs à d'autres types de sources de photons uniques, il faut donc considérer l'accélération de l'émission plutôt que le facteur de Purcell.

Cependant, pour diminuer ces pertes, il est possible de placer l'émetteur entre un film métallique (toujours protégé par une couche de diélectrique) et un nano-résonateur. Le champ est confiné à proximité de l'émetteur mais pénètre très peu dans le métal ce qui diminue drastiquement les pertes ohmiques [200]. Dans cette première démonstration expérimentale, une accélération de l'émission spontanée d'un facteur 1000 a été observée sur un colorant. Pour un nano-cristal colloïdal CdSe/ZnS l'intensité de fluorescence totale est multipliée par un facteur 2300 en cavité [201]. Ce système est schématisé figure 3.13.

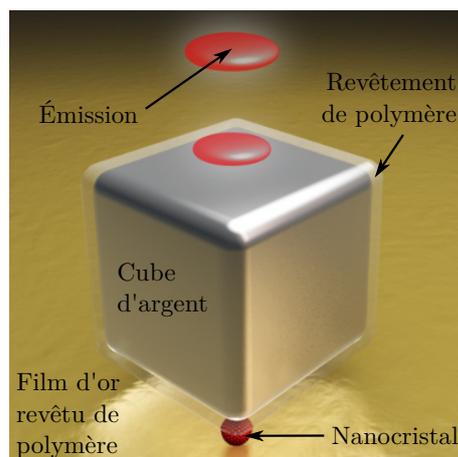


FIGURE 3.13 – Illustration d'un nano-cristal colloïdal cœur/coquille CdSe/ZnS placé entre un nano-cube d'argent et un film d'or recouverts de polymère. Tirée de [201].

Mis à part les pertes induites par le résonateur métallique, le faible volume de mode

rend difficile le recouvrement spatial entre le champ confiné et l'émetteur. Pour la plupart des émetteurs, ce dernier est donc soit statistique soit réalisé en positionnant le résonateur à quelques nanomètres près par AFM. Dans le cas particulier des émetteurs 2D, une méthode déterministe a récemment vu le jour en utilisant les coins saillants de nano-cubes métalliques pour déformer un pétale de WSe_2 (ce qui crée un site d'émission par contrainte) [202]. Une augmentation du rendement quantique de 1% à 15% a été atteinte de cette manière. Néanmoins, pour les cavités plasmoniques comme pour celles à cristaux photoniques, le champ émis est en général peu directionnel [203], ce qui réduit l'efficacité de collection.

Micro-cavités ouvertes Les micro-cavités ouvertes sont idéales pour optimiser le recouvrement spatial et spectral avec l'émetteur. Elles sont comparables à celles présentées à la section 3.1.1.2 et utilisées en physique atomique. La cavité est formée d'un micro-miroir concave et d'un miroir plan supportant l'émetteur. Leur alignement et leur distance relative sont contrôlés par des nano-positionneurs. Les facteurs de qualité de ces cavités sont typiquement supérieurs à 10^4 et les volumes de modes sont de l'ordre de quelques λ^3 . Des centres NV ont pu être couplés à une cavité ouverte (schéma à gauche de la figure 3.14) pour la première fois en 2013 [174] et un facteur de Purcell de 2 a été obtenu en 2016 [204]. Un accroissement de la densité spectrale d'émission d'un facteur 30 a été mesuré sur le même type d'émetteurs à température ambiante [205].

Récemment, une micro-cavité ouverte (représentée à droite de la figure 3.14), dont le micro-miroir a été réalisé par faisceau d'ion focalisé, a permis d'atteindre un facteur de Purcell de 8 sur un émetteur en WSe_2 exfolié. Cela correspond à une augmentation du flux de photons d'un facteur 5 et à une efficacité quantique de la source de photon unique de 46% [176].

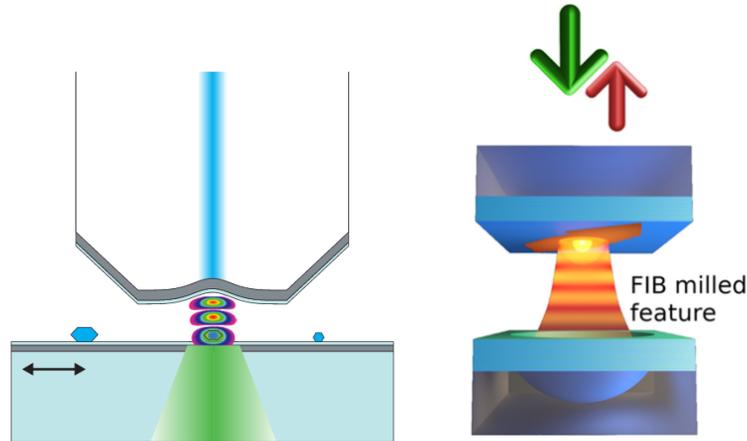


FIGURE 3.14 – **À gauche** : Schéma d’une cavité ouverte constituée d’un micro-miroir fibré usiné par laser et d’un miroir plan supportant des nano-diamants contenant des centres NV. Le miroir plan est fixé à une platine 3 axes et la longueur de cavité est contrôlée par un nano-positionneur supplémentaire. Tiré de [204]. **À droite** : Une autre cavité ouverte formée d’un miroir plan supportant une monocouche de WSe_2 exfolié et d’un micro-miroir usiné par faisceau d’ions focalisé. Dans les deux cas, l’excitation et la collection de l’émetteur passent par le miroir plan. [176]

Bilan Les dispositifs à l’état solide permettant de confiner un champ électromagnétique à proximité d’un émetteur peuvent être regroupés selon cinq grandes familles possédant chacune leurs spécificités résumées dans le tableau 3.2.

TABLE 3.2 – Résumé des caractéristiques des différents dispositifs de confinement du champ électromagnétique.

	Modes de galerie ⁷	Micro-piliers	Cristaux photoniques	Plasmonique	Ouverte
Q_{cav}	$12 \cdot 10^3$ [182]	$30 \cdot 10^3$ [188]	$45 \cdot 10^3$ [192]	16 [197]	$30 \cdot 10^3$ [176]
Accord spectral	Thermique [182]	Électrique [188]	Thermique [194]	Intrinsèque car résonance large	Position [176]
$V_{eff} (\lambda/n)^3$	6 [182]	10 [187]	0,8 [192]	0,0003 [197]	1 [204]
Accord spatial	Stochastique	In-situ [184]	AFM [188]	AFM [199]	Position [176]
Difficultés	Accord spectral difficile			Pertes ohmiques	Vibrations
	Collection difficile	Boîtes quantiques uniquement	Accord spatial difficile		

Les exemples donnés dans ce tableau ne sont pas exhaustifs mais reflètent les limites des dispositifs. Par exemple, pour les trois premiers types de cavités, l’accord spectral peut aussi être réalisé par un ajustement de la température, l’application d’un

7. Ces cavités peuvent néanmoins atteindre des facteurs de qualité extrêmement élevés lorsqu’elles sont destinées à être couplées à des atomes.

champ magnétique ou d'une contrainte ou par un effet piézoélectrique. Cependant, cet accord spectral s'étendra sur quelques nanomètres tout au plus ce qui restera inférieur à l'accordabilité d'une cavité ouverte voire à l'acceptance spectrale d'une cavité plasmonique. Il faut garder à l'esprit l'ordre de grandeur du rapport $\frac{Q_{\text{cav}}}{V_{\text{eff}}}$ qui s'étend de 10^3 à 10^5 pour les micro-cavités actuelles bien que le facteur de qualité puisse être limité par l'émetteur dans le facteur de Purcell généralisé (voir partie 3.1.2.2).

Les cavités utilisées dans cette thèse sont des micro-cavités fibrées ouvertes. Il s'agit des cavités les plus polyvalentes car elles sont mobiles et peuvent être adaptées à la plupart des émetteurs. Cela leur confère une grande accordabilité spectrale comme spatiale mais aussi un inconvénient majeur : elle peuvent vibrer. Ces fluctuations moyennent les observations expérimentales et ce problème sera abordé plus en détails dans le chapitre 4.

3.1.3.2 Nanotubes de carbone en cavité

Comme abordé dans le chapitre 1, les CNT peuvent être utilisés directement après croissance s'ils sont suspendus ou dispersés puis déposés sur un substrat. Non seulement tous les dépôts ne s'adaptent pas à tous les types de cavités, mais la pureté chirale ou le dopage de l'échantillon peuvent aussi jouer un rôle. Pour mettre en perspective ce travail de thèse, cette partie dresse un état de l'art du couplage entre des CNT et une cavité pour les sources de photons uniques comme pour les émissions d'ensembles.

Films La première étude du couplage entre un film de CNT excité optiquement et une cavité optique a été réalisé en 2010 [206]. La configuration utilisée est celle d'une cavité planaire : un film de nanotubes est encadré par deux miroirs de Bragg comme représenté à gauche de la figure 3.15. L'écartement entre ces miroirs est choisi pour placer le film au maximum de champ dans la cavité. Le facteur de qualité Q_{cav} de 160 permet une augmentation de la photoluminescence collectée d'un facteur 30 par rapport à un film émettant dans l'espace libre comme représenté à gauche de la figure 3.15.

La largeur d'émission est aussi réduite jusqu'à 8 nm (≈ 6 meV). En effet, les nanotubes utilisés dans ce film proviennent d'une poudre HiPCO (*High Pressure CO*) dispersée avec du PFO. Ce sont majoritairement des (8,7) émettant entre 1290 et 1330 nm (dans la bande télécoms O). En 2012, la même équipe réussit à coupler un film à un guide d'onde en silicium [207]. Cela confirme l'intérêt des nanotubes de carbone appliqués aux dispositifs télécoms et à l'optoélectronique. Dans la continuité de ce travail, des nanotubes ont pu être couplés à des micro-anneaux de silicium de diamètre 5 μm ou 10 μm [208]. Ces micro-cavités présentent des modes de galerie et un facteur de qualité de l'ordre de 4500. Cette expérience permet d'obtenir des pics d'émissions régulièrement espacés correspondant aux nanotubes couplés avec les différents modes de la micro-cavité. Cela souligne l'intérêt des nanotubes pour

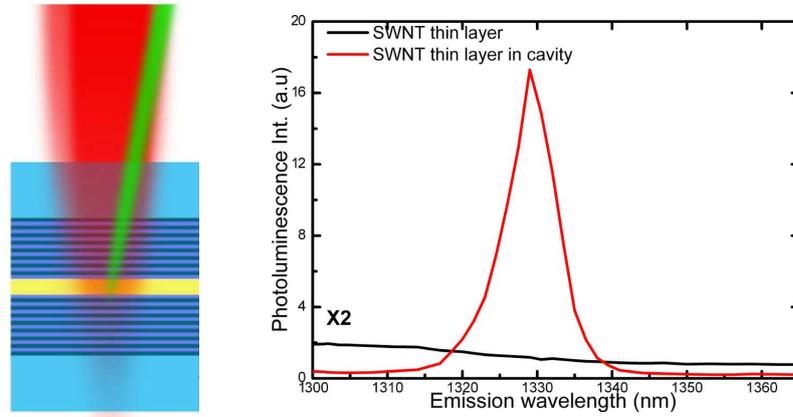


FIGURE 3.15 – **À gauche** : Schéma de la cavité optique. Le film de nanotubes est représenté en jaune, les miroirs de Bragg et leur substrat en nuances de bleu, l’excitation laser en vert et l’émission en rouge. **À droite** : Spectre de photoluminescence d’un film de nanotube en espace libre (en noir) et en cavité (en rouge). Tiré de [206].

le multiplexage en longueur d’onde. Une expérience similaire a mis en évidence une augmentation de l’émission d’un facteur 2 sur 30 pics résonants avec un micro-anneau [209].

Dans le but de produire une source télécom sur puce, un film de nanotubes (8,7) a été couplé avec une cavité photonique en 2017 [210]. Cette cavité présente un excellent rapport $\frac{Q_{\text{cav}}}{V_{\text{cav}}} \left(\frac{\lambda}{n}\right)^3$ supérieur à $3 \cdot 10^5$. Cela permet de réduire drastiquement la largeur d’émission jusqu’à 0,35 nm ($\approx 300 \mu\text{eV}$) tout en la couplant à un guide d’onde en silicium. Le dispositif ainsi qu’une carte de PLE de l’émission en sortie du guide d’onde sont visibles figure 3.16. Notons que malgré le haut facteur de qualité $Q_{\text{cav}} > 7500$ et le faible volume de mode $V_{\text{eff}} \approx 0,024(\lambda/n)^3$ aucun problème d’accord spatial ou spectral ne se présente. En effet, dans le cas d’une densité de nanotubes suffisamment élevée, quelques émetteurs présenteront statistiquement les bonnes propriétés pour se coupler à la cavité.

Un autre travail significatif a démontré l’augmentation de la photoluminescence d’un film de nanotubes de carbone d’un facteur 60 en le couplant avec une cavité planaire [211]. La solution de nanotubes (8,3) utilisée a une excellente pureté chirale. Ainsi, pour optimiser l’intensité de la source, la longueur de cavité présente un gradient (cavité en V), ce qui permet d’obtenir statistiquement des zones de l’échantillon pour lesquels la cavité est accordée spectralement avec un émetteur. De cette façon, le dispositif a pu parvenir à une efficacité de couplage de 54% de l’émission dans le mode de cavité et à une directivité de la lumière collectée inférieure à 2° .

En 2017, l’équipe de Jana Zaumseil à Heidelberg a pu combiner leur progrès en purification des nanotubes de carbone à une micro cavité de type Fabry-Pérot avec deux miroirs métalliques pour parvenir au régime de couplage fort [212]. Elle a pu reproduire ce résultat en excitant électriquement le film de nanotube en intégrant

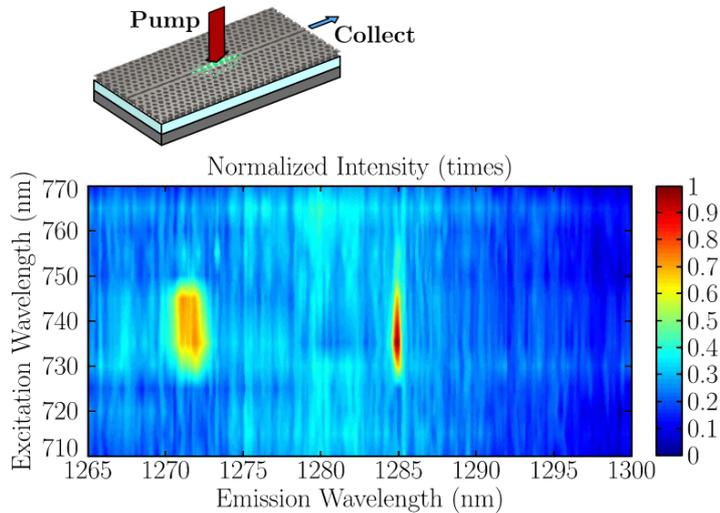


FIGURE 3.16 – **En haut** : Schéma d’une cavité photonique à cœur creux (en gris) entourant un film de nanotubes de carbone (en bleu). Le dispositif est excité optiquement et la photoluminescence est collectée à la sortie d’un guide d’onde en silicium. **En bas** : Carte de photoluminescence en excitation du dispositif. Deux pics d’émission se démarquent : le premier à 1271 nm d’une largeur de 1,75 nm et le second à 1285 nm d’une largeur de 0,35 nm. Tiré de [210].

un transistor à effet de champ à différentes micro-cavités (réseau de résonateurs plasmoniques ou cavité Fabry-Pérot) [213, 214]. L’un de ces dispositifs, décrit à gauche de la figure 3.17, est formé de deux miroirs métalliques dont l’un sert aussi de grille entourant un film de nanotubes contacté électriquement (par le drain et la source). En changeant la distance entre les deux miroirs, ce système peut émettre entre 1060 et 1530 nm. Une configuration semblable de deux conducteurs (aluminium et oxyde d’indium-étain) entourant un film de nanotubes a permis la fabrication de diode électroluminescente organique dans le proche infrarouge [215]. Ces expériences laissent espérer la réalisation prochaine d’un laser avec un film de nanotubes de carbone comme milieu amplificateur.

Nano-structures individuelles La suite de cette partie est consacrée aux CNT uniques couplés à des cavités. Dans les dispositifs présentés, satisfaire l’accord spatial et spectral avec l’émetteur représente une toute autre difficulté que dans le cas des films. La première publication reportant un nanotube individuel couplé à une micro-cavité remonte à 2008 [216]. Ce dispositif, représenté figure 3.18, est un transistor à effet de champ dont la grille forme l’un des miroirs de la cavité comme pour le dispositif figure 3.17. Pour réaliser l’accord spatial, la cavité a été fabriquée autour d’un nanotube suspendu déposé sur un substrat par tamponnage (voir partie 1.2.1). L’émission du nanotube de carbone excité électriquement était suffisamment large pour que l’accord spectral ne soit pas limitant. Malgré cela, une augmentation d’un

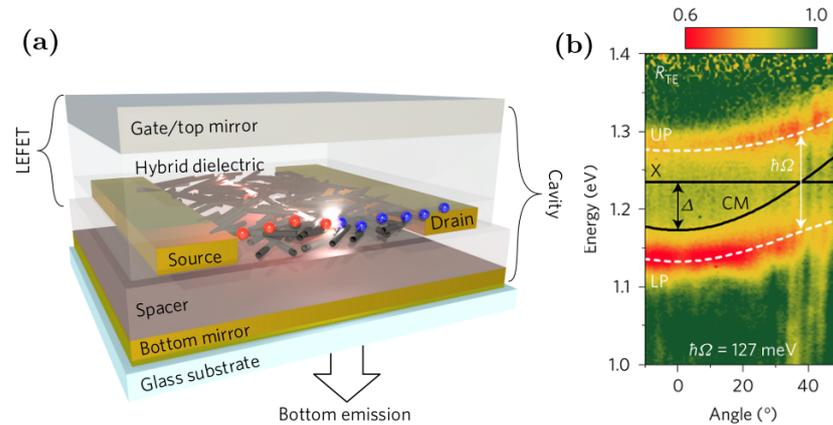


FIGURE 3.17 – **À gauche** : Schéma d’une micro-cavité combinée à un transistor à effet de champ avec un film de nanotubes de carbone comme semi-conducteur. La grille en argent (*gate*) fait aussi office de miroir afin de former une micro-cavité avec une couche d’or déposée sur le substrat et maximiser le champ électromagnétique au voisinage du film de nanotubes. **À droite** : Levée de dégénérescence de Rabi ($\hbar\Omega = 2\hbar g$) entre la dispersion de l’exciton (ligne noire X) et celle du mode cavité (ligne noire CM). L’apparition des deux modes de polaritons (LP et UP) caractérise le régime de couplage fort. Tiré de [214].

facteur 4 de l’intensité collecté a été constatée.

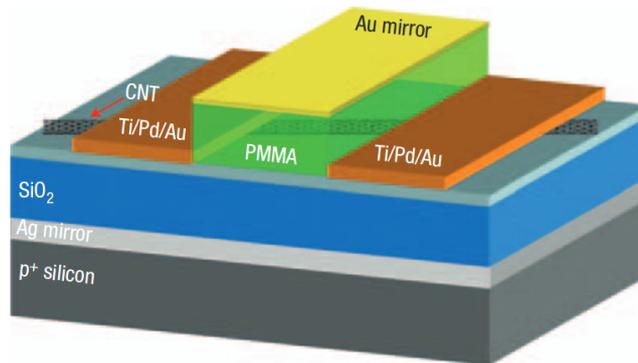


FIGURE 3.18 – Schéma d’une micro-cavité combinée à un transistor à effet de champ avec un nanotube de carbone individuel comme semi-conducteur. Le miroir d’or à la surface de l’échantillon joue aussi le rôle de grille pour le transistor. Le nanotube est excité électriquement et la lumière est collectée à travers le miroir d’or. Tiré de [216].

Les différentes étapes de fabrication d’une micro-cavité autour d’un nanotube individuel peuvent dégrader son émission (élargissement spectral, scintillement ou blanchiment). Coupler un nanotube directement issu d’une croissance sans passer par une dispersion est donc avantageux. Cependant, il est peu probable qu’un nanotube

3.1. COUPLAGE ÉMETTEUR/CAVITÉ

ayant crû à proximité d'une micro-cavité satisfasse les conditions d'accord spectral et spatial.

En 2013, une équipe a pu faire croître des nanotubes individuels suspendus entre un substrat et un micro-disque avec un taux de réussite de 10% [217]. Ces nanotubes se couplent avec les modes de galerie ($Q_{\text{cav}} \approx 3000$) comme démontré sur la figure 3.19 mais leur photoluminescence n'est que peu modifiée.

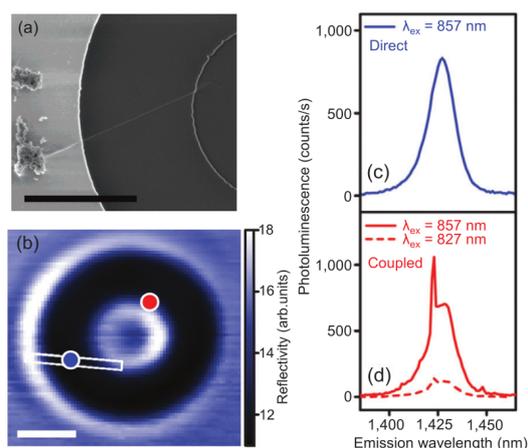


FIGURE 3.19 – (a) Image SEM d'un nanotube de carbone suspendu entre un substrat et un micro-disque de $3\mu\text{m}$ de diamètre. (b) Image en réflexion du dispositif. L'échelle en (a) et (b) mesure $2\mu\text{m}$. Le cadre blanc situe le nanotube de carbone et les points bleu et rouge indiquent les positions auxquelles les données (c) et (d) ont été acquises. (c) et (d) Spectres de photoluminescence du nanotube de carbone suspendu (en bleu) et couplé avec le micro-disque (en rouge). Tiré de [217].

La même équipe a fait croître en 2014 des nanotubes entre un substrat et une cavité photonique [218] comme schématisé figure 3.20. Dans ce cas, 85% de la lumière émise pouvait être couplée à la cavité bien qu'il n'y ait pas de contrôle déterministe sur l'accord spatial avec l'émetteur. Toutefois, il est possible d'accorder spectralement l'émetteur à la cavité par chauffage laser [219]. En effet, le chauffage décale la photoluminescence vers le bleu en désorbant des molécules piégées à la surface du nanotube.

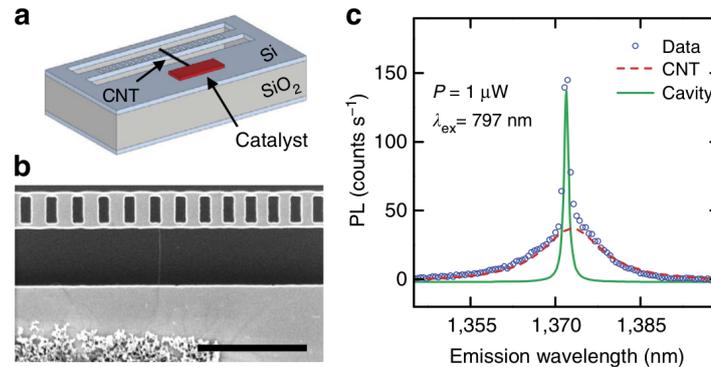


FIGURE 3.20 – (a) et (b) Schéma et image SEM du dispositif. Le nanotube de carbone est suspendu entre le substrat et une cavité photonique unidimensionnelle. L'échelle est de $2\ \mu\text{m}$. (c) Spectre de photoluminescence typique d'un nanotube de carbone couplé à une micro-cavité photonique. Les points bleus sont issus de données expérimentales tandis que les lignes sont des ajustements lorentziens. Tiré de [218].

Une avancée significative vers un couplage déterministe des nanotubes à des micro-cavités monoblocs par diélectrophorèse a été publiée en 2014 [220]. Une tension alternative est imposée entre deux électrodes ce qui permet à un nanotube dispersé en solution aqueuse de s'y accrocher (voir encart de la figure 3.21). Une optimisation des paramètres de temps de contact entre les électrodes et la solution, de concentration et de fréquence de la tension imposée permet de contrôler le nombre de nanostructures déposées. Cette technique a permis de créer des dispositifs tout-intégrés en couplant des nanotubes de carbone issus d'une dispersion aqueuse à un guide d'onde photonique [19]. Elle a aussi pour effet de compenser partiellement l'élargissement de l'émission des nanotubes excités électriquement grâce aux résonances du guide d'onde photonique (voir figure 3.21).

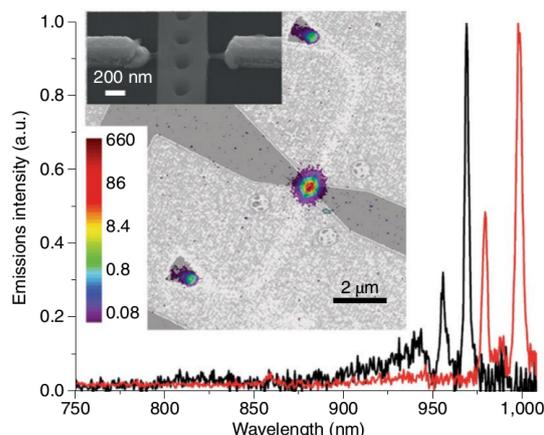


FIGURE 3.21 – **Graphique** : Spectres d’un nanotube de carbone excité électriquement collecté directement (en noir) et collecté via des réseaux reliés au guide d’onde photonique (en rouge). **Encarts** : Image SEM d’un nanotube déposé par diélectrophorèse au dessus d’un guide d’onde photonique et image CCD de l’émission (au niveau du nanotube et des réseaux) en échelle de couleur superposée à une image du dispositif en échelle de gris. Tiré de [19].

En dirigeant l’émission collectée par les guides d’onde vers des détecteurs de photons uniques supraconducteurs, une étude de l’autocorrélation de l’intensité d’un nanotube a pu être menée directement sur puce [18]. Le schéma du dispositif et une autocorrélation typique sont représentés figure 3.22. L’autocorrélation ne présente pas une valeur proche de 0 à délai nul ($g^{(2)}(0) = 0,49$), cela peut soit signifier que l’émetteur n’est pas unique soit que l’échauffement induit par le dispositif diminue la localisation des excitons (voir partie 2.1).

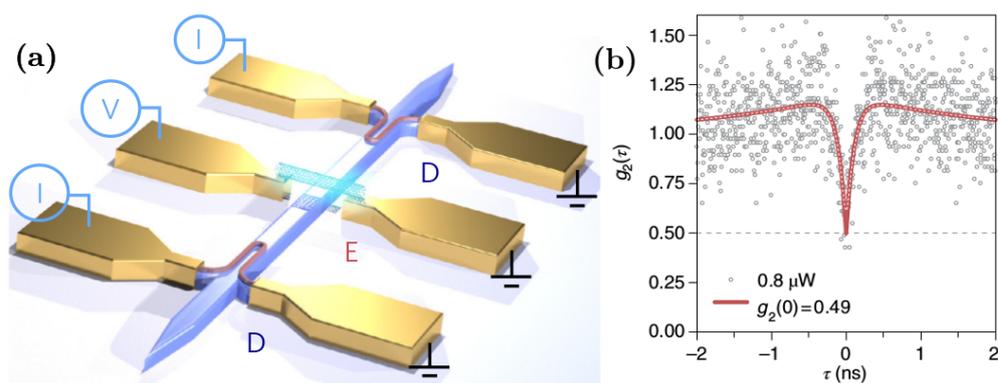


FIGURE 3.22 – (a) Schéma d’un nanotube de carbone déposé par diélectrophorèse (E) couplé à un guide d’onde. Les deux extrémités de ce dernier sont couplées à des détecteurs de photons uniques supraconducteurs (D). (b) Autocorrélation expérimentale de l’intensité émise par le nanotube de carbone (points gris) et fonction de corrélation déconvoluée (ligne rouge). Tiré de [18].

CHAPITRE 3. ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE CAVITÉ OPTIQUE

Le dépôt par diélectrophorèse ne permet pas le couplage avec n'importe quel type de cavité à cause de l'encombrement des électrodes. En outre, les meilleurs qualités d'émission restent obtenues par excitation optique.

Il est toujours possible de coupler par chance un nanotube de carbone avec une cavité monobloc. Dernièrement, une augmentation de la photoluminescence collectée d'un facteur 50 a été observée sur un émetteur unique ($g^{(2)}(0) = 0,1$) en déposant une goutte de suspension de nanotubes dans une cavité photonique à cœur creux [221]. La suspension contient des nanotubes (6,5) dopés diazonium en suffisamment faible concentration pour que le dépôt permette l'étude des nanostructures individuelles. L'accélération de l'émission spontanée est aussi confirmée en mesurant une décroissance du temps de vie d'environ 30% en cavité. Le dispositif et les spectres typiques de photoluminescence des tubes en cavité et hors cavité sont présentés figure 3.23.

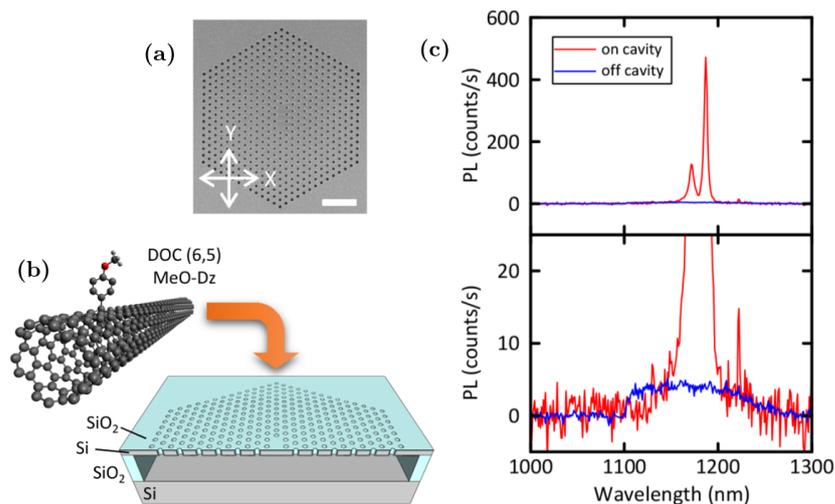


FIGURE 3.23 – (a) Image SEM du dessus de la cavité photonique à cœur creux. L'échelle en blanc mesure 2 μm . (b) Schéma des nanotubes de carbone dopés et de la cavité photonique à cœur creux. (c) Photoluminescences typiques de nanotubes en cavité (en rouge) ou hors cavité (en bleu). Le graphique du bas est une mise à l'échelle des spectres pour observer l'émission hors cavité. La photoluminescence est filtrée par un passe-haut en longueur d'onde à 1100 nm. Tiré de [221].

De manière similaire, un autre groupe a pu coupler des nanotubes (5,4) ou (6,4) à des micro-cavités plasmoniques [35]. Ces cavités sont décrites dans la figure 3.24. Ils ont mesuré des facteurs de Purcell jusqu'à 180 (57 en moyenne) et une augmentation du rendement quantique jusqu'à 62% (42% en moyenne). Les nanotubes sont déposés sur un réseau de résonateurs suffisamment dense pour que l'augmentation de l'émission de tous les nanotubes soit d'au moins un ordre de grandeur. Pour cette raison, ils qualifient leur système de quasi-déterministe.

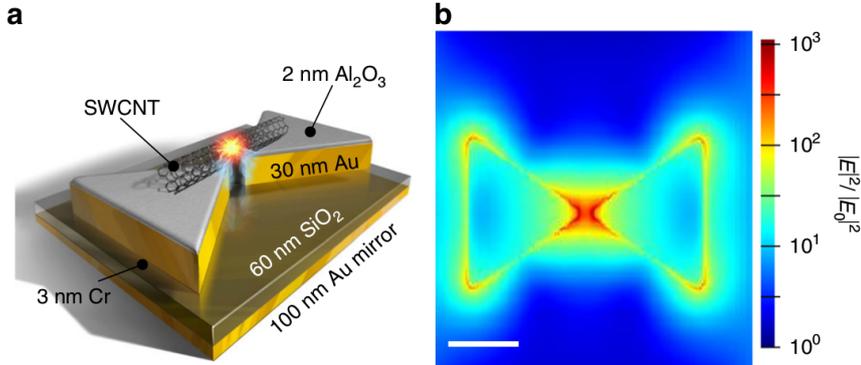


FIGURE 3.24 – (a) Schéma d'un résonateur plasmonique *nœud-papillon* couplé à un nanotube de carbone. Le nanotube est séparé du résonateur par un dépôt de 2 nm d'alumine. (b) Simulation de la distribution d'augmentation du champ à proximité du résonateur plasmonique. L'échelle en blanc mesure 100 nm. Tiré de [35].

Toutefois, bien que le couplage des nanotubes avec une micro-cavité soit quasi-systématique, la comparaison entre les nanotubes couplés et non couplés est statistique. Dans les cas des résonateurs en *nœud-papillon* une indication relative de ce couplage est donnée par l'alignement du nanotube avec l'axe privilégié du résonateur [35]. Cependant, il reste impossible de le faire varier et d'étudier l'influence d'une micro-cavité sur un seul nanotube. La grande variabilité des propriétés d'émission des nanotubes même au sein d'une chiralité donnée impose donc une étude statistique.

En revanche, une cavité ouverte permet de comparer directement l'émission d'une nano-structure avec et sans effet de cavité dans de mêmes conditions d'excitation (voir partie 3.1.3.1). Elle donne aussi accès à un contrôle du couplage et de l'accord spatial et spectral et donc à une compréhension plus fine des effets de la micro-cavité sur l'émetteur. Grâce à cette approche, notre groupe est parvenu à réaliser une source de photons uniques à 885 nm accordable sur 4 THz et présentant un facteur de Purcell d'au maximum 5 [37]. Le volume de mode était d'environ $20\lambda^3$ pour un facteur de qualité maximal Q_{cav} de 36000. En 2017, un facteur de Purcell significativement plus élevé ($F_p \approx 60$, pour $V_{\text{eff}} \approx 2\lambda^3$) a permis de mettre en relief l'effet de couplage asymétrique entre une cavité et un nanotube de carbone à basse température [222] détaillé dans l'annexe B.2. Cet effet est visible sur la reconstruction du profil spectral d'émission en cavité figure 3.25. Ce profil est acquis en intégrant la photoluminescence en sortie de la cavité pendant que ω_{cav} balaye tout le spectre d'émission du nanotube. Pour ces résultats, le facteur de qualité est suffisamment élevé pour que le profil spectral obtenu soit proportionnel à l'efficacité de la source (voir partie 5.2.2). La figure 3.25 permet de constater que cette efficacité n'est pas directement proportionnelle au spectre d'émission du nanotube de carbone en espace libre. En effet, plus l'indice de mode de cavité est faible, plus le couplage est élevé et plus l'intensité de la bande latérale rouge de phonons normalisée par l'intensité de la ZPL est élevée. Un ajustement avec la formule 3.42 liant l'efficacité au spectre d'émission en espace libre fournit une estimation du couplage $\hbar g \approx 40 \mu\text{eV}$.

Il correspond à environ $1/8^{\text{ème}}$ de la largeur de la ZPL.

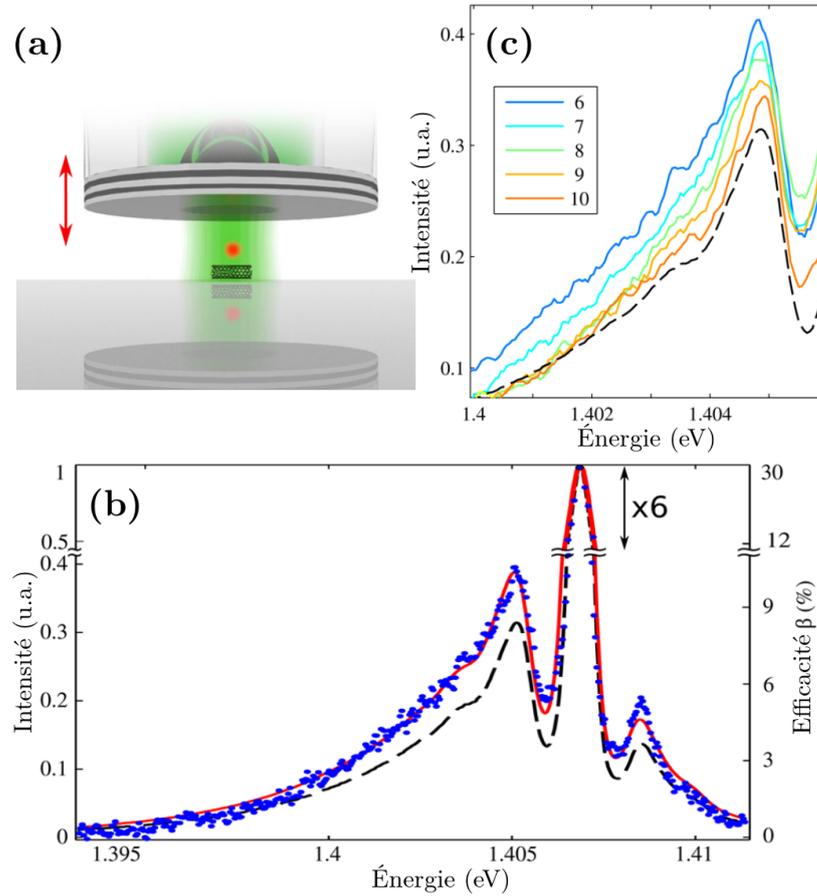


FIGURE 3.25 – (a) Vue d’artiste d’un nanotube couplé à une micro-cavité fibrée. (b) Efficacité de la source de photon unique formée par un nanotube couplé à la micro-cavité (points bleus), spectre de photoluminescence en espace libre du nanotube (pointillés noirs) et ajustement de l’efficacité à partir de la relation 3.42 (ligne rouge). (c) Intensité de la bande latérale rouge de phonons normalisée par l’intensité de la RZP pour les indice de modes 6 à 10. Tiré de [222].

Excepté pour les micro-cavités plasmoniques, le facteur de qualité effectif décrivant le facteur de Purcell est en général limité par le facteur de qualité de l’émetteur dans le cas des CNT ($Q_{\text{cav}} > 10000$, $Q_{\text{ém}} < 5000$). Or, le déphasage pur élargissant l’émetteur ($Q_{\text{ém}} \approx \frac{\omega_{\text{ém}}}{\gamma^*}$) est dû en grande partie à l’excès d’énergie apporté par le laser d’excitation. Puisque coupler un nanotube de carbone à une cavité augmente son intensité, en adaptant la puissance d’excitation pour conserver un rapport signal sur bruit constant le facteur de qualité de l’émetteur sera plus élevé en cavité que dans l’espace libre [35]. La largeur d’émission d’un nanotube couplé à une cavité plasmonique est tracée en fonction de la puissance d’excitation en cavité et hors cavité figure 3.26.

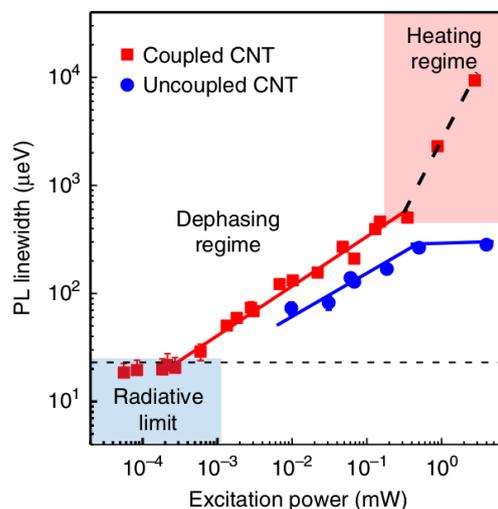


FIGURE 3.26 – Largeur d’émission d’un nanotube de carbone couplé à une cavité plasmonique (carrés rouges) ou émettant en espace libre (points bleus) en fonction de la puissance d’excitation. Tiré de [35].

L’augmentation de la photoluminescence en cavité permet de diminuer l’excitation de plus de deux ordres de grandeur. Diminuer l’excitation a pour effet d’augmenter le facteur de qualité de l’émetteur en minimisant les fluctuations électrostatiques de l’environnement (voir partie 1.2.2.3). Dans le cas où le facteur de qualité effectif est limité par celui de l’émetteur (pour les micro-cavités fibrées par exemple), cela augmenterait encore le facteur de Purcell.

Pour augmenter le taux d’émission spontanée d’un émetteur à l’état solide en cavité, il faut satisfaire certaines conditions :

- Réaliser les accords spatial et spectral de façon stochastique ou en accordant la cavité. Dans le cas des nanotubes de carbone, réaliser l’accord spectral revient aussi à sélectionner une chiralité précise lors de la synthèse ou de la dispersion.
- Minimiser le volume de mode de la cavité. En général cela revient à minimiser le volume physique de la cavité sauf pour les cavités plasmoniques. Pour ces dernières, il existe un compromis entre la probabilité de réaliser l’accord spatial et minimiser le volume de mode.
- Adapter le facteur de qualité de la cavité à celui de l’émetteur pour faire un compromis entre la collection de l’intensité et l’augmentation de l’effet Purcell (il paraît judicieux de choisir $Q_{\text{cav}} \gtrsim Q_{\text{ém}}$).
- Maximiser le facteur de qualité de l’émetteur en réduisant autant que possible les fluctuations de l’environnement (par exemple en minimisant l’excitation et en optimisant la matrice dans laquelle sont dispersés les CNT).

- Assurer la directionnalité de la source en confinant au maximum le champ orthogonalement à l'axe optique de collection.

Dans ce travail de thèse, le champ est confiné à proximité des nanotubes de carbone par une micro-cavité Fabry-Pérot fibrée. Ce type de cavité permet non seulement de réaliser les accords spatial et spectral de manière déterministe mais aussi, par son caractère amovible, de comparer l'émission d'un même émetteur en espace libre et en cavité. Ce contrôle précis du désaccord spectral est nécessaire à l'étude de l'effet de couplage asymétrique entre un nanotube et la cavité décrit partie 3.33. Toutefois, la polyvalence de ces micro-cavités est contrebalancée par leurs fluctuations de longueur qui moyennent les effets observés. Minimiser ces vibrations fait l'objet du chapitre 4 tandis que la description précise de ces micro-cavités est menée dans le chapitre suivant.

3.2 Micro-cavité fibrée

Les micro-cavités fibrées sont des cavités ouvertes de type Fabry-Pérot dont au moins un miroir est usiné sur l'extrémité d'une fibre optique. Initialement, ces micro-cavités ont été conçues pour miniaturiser des expériences de physique atomique afin de réaliser des dispositifs sur puce. Leur autre avantage majeur est de former des modes de champ très confinés latéralement [223]. Leur accordabilité, leur grande finesse et leur faibles pertes en font des instruments de choix pour de nombreuses applications [36] dont l'optique quantique des nano-structures [224, 37, 225, 226].

Dans notre cas, la micro-cavité est formée d'un miroir plan sur lequel est déposé l'échantillon étudié et d'un micro-miroir fibré. Pour être stable, ce micro-miroir doit être concave. La dépression concave est fabriquée par ablation laser sur l'extrémité d'une fibre optique puis, un jeu de couches diélectriques y est déposé pour former un miroir de Bragg. Cette technique est issue d'une collaboration avec l'équipe *Atom chips* de Jakob Reichel du laboratoire Kastler Brossel [36]. Elle permet d'atteindre d'excellentes rugosités de surface et des géométries bien contrôlées.

Ce chapitre est consacré à la caractérisation et à l'optimisation de ces micro-cavités fibrées dans le cadre d'expériences de CQED sur des nanotubes de carbone émettant dans les bandes télécoms. Les liens entre les propriétés spectrales des modes de cavités et la géométrie du micro-miroir sont rappelés dans une première partie. Puis, le processus de fabrication de ces miroirs est détaillé afin d'identifier les leviers expérimentaux permettant de réduire au maximum les volumes de mode. Enfin, la finesse des micro-cavités a été mesurée. L'écart important constaté entre la finesse attendue et la finesse réelle est commenté. La description complète du dispositif de CQED sera abordée dans le chapitre 5.

3.2.1 Cavité optique Fabry-Pérot

La micro-cavité fibrée est un interféromètre de Fabry-Pérot : deux miroirs face à face entre lesquels peut s'établir une onde stationnaire. Dans la partie 3.2.1.1, les modes propres d'une cavité Fabry-Pérot sont rappelés ainsi que leurs critères de stabilité. Puis, les notions d'intervalle spectral libre (FSR), de finesse et de facteur de qualité sont développés.

Les cavité optiques utilisées sont composées d'un miroir plan et d'un micro-miroir concave. Les deux paramètres géométriques décrivant ce système sont la distance entre les deux miroirs et le rayon de courbure du miroir concave. L'analyse spectrale de la lumière transmise à travers la cavité, présentée partie 3.2.1.2, permet d'estimer ces paramètres.

3.2.1.1 Modes de cavité

L'onde stationnaire qui s'établit entre deux miroirs est d'abord décrite d'un point de vue unidimensionnel. Puis, les modes correspondant à une cavité plan/concave sont décrits dans le cadre de l'optique gaussienne.

Résonance et facteur de qualité Une onde plane de longueur d'onde λ est résonante entre deux miroirs distants de L si l'onde a la même phase après un aller-retour :

$$p \frac{\lambda_p}{2} = L \quad \text{où } p \in \mathbb{N}^* \quad (3.43)$$

En terme de fréquence $\nu \equiv \frac{c}{\lambda}$, cette condition s'écrit $p \frac{c}{2\nu_p} = L$. L'intervalle spectral libre (FSR, *Free Spectral Range*) est défini comme la distance entre 2 modes consécutifs. Pour éviter les confusions, l'indice ν ou λ précise si cette distance est en fréquence ou en longueur d'onde :

$$\begin{cases} \text{FSR}_\nu & \equiv \nu_{p+1} - \nu_p = \frac{c}{2L} \\ \text{FSR}_\lambda & \equiv \lambda_p - \lambda_{p+1} \underset{p \gg 1}{\approx} \frac{\lambda_p}{p} = \frac{2L}{p^2} \end{cases} \quad (3.44)$$

Considérant des miroirs sans perte de réflectivité R_m ($R_m + T_m = 1$), la transmission de la cavité s'écrit :

$$T = \frac{1}{1 + F \sin^2\left(\frac{2\pi}{\lambda} L\right)} \quad \text{où } F \equiv \frac{4R_m}{(1 - R_m)^2} \quad (3.45)$$

F est appelé coefficient de finesse. Il ne doit pas être confondu avec la finesse \mathcal{F} définie ci-dessous.

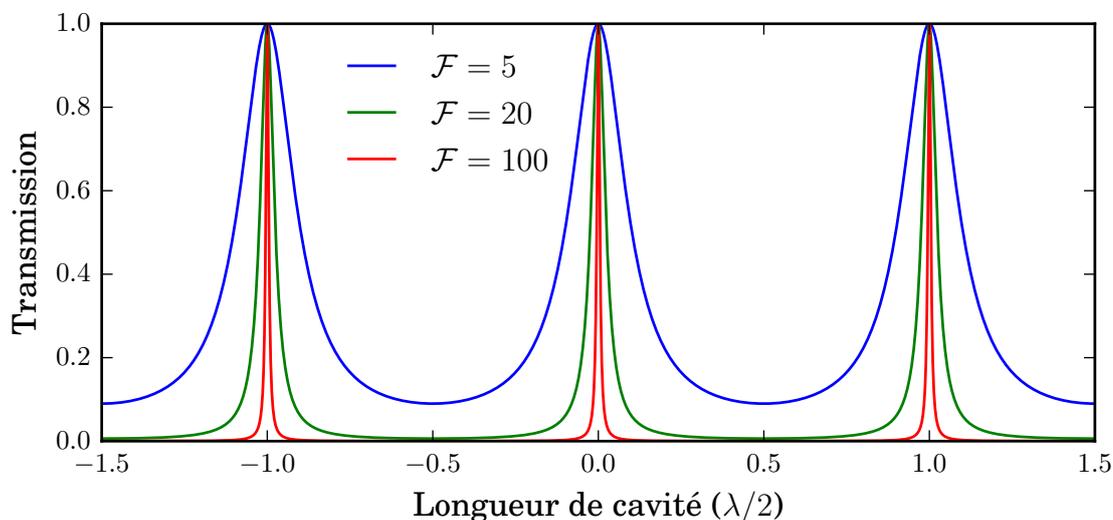


FIGURE 3.27 – Transmission de la cavité en fonction de la longueur de cavité (cf. relation 3.45) pour une longueur d’onde λ d’excitation donnée et différentes finesesses $\mathcal{F} \approx \frac{\pi}{2} \sqrt{F}$.

Le contraste des interférences vaut $\frac{F}{2+F}$ et les fréquences $\nu_{1/2}$ à mi-hauteur du pic de transmission du mode n satisfont l’équation $F \sin^2 \left(\pi p \frac{\nu_{1/2}}{\nu_p} \right) = 1$. Cela donne les largeurs à mi-hauteur (FWHM) suivantes :

$$\begin{cases} \Delta\nu &= \frac{\text{FSR}_\nu}{\mathcal{F}} & \text{où } \mathcal{F} \equiv \frac{\pi}{2 \arcsin \left(F^{-\frac{1}{2}} \right)} \\ \Delta\lambda &= 4\pi L \frac{1}{2\pi\mathcal{F}p^2-1} \approx \frac{\text{FSR}_\lambda}{\mathcal{F}} \end{cases} \quad (3.46)$$

La grandeur \mathcal{F} , appelée finesse, est intrinsèque à la cavité et s’approxime par⁸ :

$$\mathcal{F} \approx \frac{\pi}{2} \sqrt{F} = \pi \frac{\sqrt{R_m}}{1 - R_m} \quad (3.47)$$

Cette grandeur est fréquemment utilisée car elle ne dépend pas du mode p . Elle est liée au nombre moyen d’allers-retours $N_{\text{cav}} = 2\pi\mathcal{F}$ des photons entre les deux miroirs avant de sortir de la cavité. En revanche, le facteur de qualité défini comme la fréquence à résonance divisée par la FWHM dépend du mode considéré :

$$Q_{\text{cav}} \equiv \frac{\nu_p}{\Delta\nu_p} = p\mathcal{F} \approx \frac{\lambda_p}{\Delta\lambda_p} \quad (3.48)$$

Il est lié au temps de vie τ_{cav} des photons dans la cavité qui s’écrit $\tau_{\text{cav}} = \frac{Q_{\text{cav}}}{2\pi\nu_p}$.

8. Dans le chapitre 4, des cavités de basses finesesses sont considérées. Toutefois, le coefficient de réflexion vérifie toujours $R_m > 0,24$, et donc $\mathcal{F} \approx \frac{\pi}{2} \sqrt{F}$ à au plus, 10% près. Mis à part ce cas particulier, $R_m \approx 1$ et l’erreur sur la finesse est négligeable.

A proximité d'une résonance λ_p et pour une finesse grande devant 1, un pic de transmission prend la forme d'une lorentzienne :

$$T = \frac{1}{1 + \left(2\mathcal{F}\frac{\lambda-\lambda_p}{\text{FSR}}\right)^2} = \frac{1}{1 + \left(2\frac{\lambda-\lambda_p}{\Delta\lambda}\right)^2} \quad (3.49)$$

Critères de stabilité et modes Si l'on considère un système réel tridimensionnel, au moins l'un des deux miroirs doit être courbé pour confiner la lumière au voisinage de l'axe de la cavité. En effet, pour que la lumière ne fuit pas latéralement, l'angle d'un faisceau lumineux avec l'axe optique ne doit pas croître avec le nombre de ses allers-retours dans la cavité. Cette condition peut être exprimée en utilisant le formalisme des matrices ABCD. Ces matrices décrivent la propagation d'un faisceau lumineux dans un milieu en permettant de calculer à une distance donnée son écart à l'axe optique et son angle par rapport à cet axe. Ainsi, la propagation d'un faisceau sur un aller-retour dans une cavité de longueur L avec deux miroirs de rayons de courbures \mathcal{R}_1 et \mathcal{R}_2 est obtenue grâce à la matrice M [227] :

$$M = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{\mathcal{R}_1} & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{\mathcal{R}_2} & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & L \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (3.50)$$

miroir 1
retour
miroir 2
aller

Pour que l'angle du faisceau ne diverge pas, il faut que le module des valeurs propres de M reste inférieur à 1. Cette condition est satisfaite si $\text{tr}[M] \leq 2$. Cela se traduit par la condition géométrique suivante :

$$0 \leq G_1 G_2 \leq 1 \text{ où } G_i \equiv 1 - \frac{L}{\mathcal{R}_i} \quad (3.51)$$

Dans le cadre de cette thèse, l'un des miroirs fait aussi office de substrat pour l'échantillon et est choisi plan pour faciliter les dépôts (voir partie 1.2.1.3). Le rayon de courbure \mathcal{R} du deuxième miroir est donc positif, il est concave. La cavité est stable tant que sa longueur ne dépasse pas \mathcal{R} . Le paramètre géométrique G vérifie :

$$G \equiv 1 - \frac{L}{\mathcal{R}} > 0$$

La structure latérale impose aussi une quantification des modes propres, cela introduit deux autres indices l et m . Les modes du champ en cavité $E_{p,l,m}$ ne sont stables que si leurs fronts d'ondes concordent avec la courbure des miroirs. La direction de l'axe optique est notée \mathbf{z} , les directions transverses sont \mathbf{x} et \mathbf{y} . Les miroirs plan et concave sont placés respectivement en $z = 0$ et $z = L$. La résolution paraxiale de l'équation de Helmholtz [227] donne :

$$\begin{cases} E_{p,l,m}(x, y, z) &= A_p(z) \mathcal{G}_{p,l}(x, z) \mathcal{G}_{p,m}(y, z) \\ \mathcal{G}_{p,j}(\xi, z) &= \mathcal{H}_j\left(\frac{\sqrt{2}\xi}{w}\right) \exp\left(-\frac{\xi^2}{w^2}\right) \exp\left(-i\frac{k_p \xi^2}{2\mathcal{R}_f}\right) \exp\left(i\left(j + \frac{1}{2}\right)\zeta\right) \\ A_p(z) &= E_0 \frac{w_0}{w} \exp(-ik_p z) \end{cases} \quad (3.52)$$

\mathcal{H}_i est le $i^{\text{ème}}$ polynôme de Hermite⁹ et les variables longitudinales ζ , w et \mathcal{R}_f sont fonctions de z/z_R où $z_R = \sqrt{L\mathcal{R}G}$ est la longueur de Rayleigh. ζ , w et \mathcal{R}_f désignent respectivement :

- La phase de Gouy :

$$\zeta(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \quad (3.53)$$

- La largeur du faisceau :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad \text{où } w_0^2 = \frac{\lambda}{\pi} z_R \quad (3.54)$$

- Le rayon de courbure du front d'onde :

$$\mathcal{R}_f(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_R}{z}\right)^2\right) \quad (3.55)$$

La divergence θ du mode est imposée par la largeur minimale du faisceau. Elle est donnée par :

$$\theta \approx \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad (3.56)$$

Le rayon de courbure du front d'onde correspond bien à ceux des miroirs : $\mathcal{R}_f(z) \xrightarrow{z \rightarrow 0} \infty$ et $\mathcal{R}_f(L) = L + \mathcal{R}G = \mathcal{R}$. La phase du champ $E_{p,l,m}$ s'écrit :

$$\phi_{p,l,m}(x, y, z) = k_p \left(z + \frac{x^2 + y^2}{2\mathcal{R}_f}\right) - (1 + l + m)\zeta \quad (3.57)$$

Cela modifie la condition de résonance 3.43 avec $l + m + 1$ modes dégénérés. Elle devient :

$$\nu_{p,l,m} = \frac{c}{2L} \left[p + (1 + l + m) \frac{\arccos(\sqrt{G})}{\pi} \right] \quad (3.58)$$

Pour les modes exploités ($p \geq 5$ et $l + m = 0$), $\frac{\arccos(\sqrt{G})}{\pi} < 0,03p$, et donc $\nu_{p,0,0} \approx$

9. $\mathcal{H}_i(X) \equiv (-1)^i \exp(X^2) \frac{\partial^i}{\partial X^i} \exp(-X^2)$

$\frac{c}{2L}p$. Les équations développées partie 3.2.1.1 restent de bonnes approximations.

Les paramètres géométriques L et \mathcal{R} d'une cavité optique conditionnent la valeur de ses résonances à travers l'équation 3.58. Il est donc possible de les déduire par l'étude d'un spectre de transmission.

3.2.1.2 Spectre de transmission

Dans ce dispositif, le miroir concave est usiné sur l'extrémité d'une fibre optique comme explicité par la suite (partie 3.2.2.1). La longueur de la cavité est contrôlée indifféremment grâce à un positionneur inertielle ou un actionneur piézoélectrique (resp. ANPx51/RES Attocube et P-111.01T PICA PhysikInstrumente), la distinction entre ces deux moyens de translation est abordée dans le chapitre 4. Ils permettent de déplacer le miroir concave par rapport au miroir plan avec une précision nanométrique. Pour mesurer et ajuster les résonances de la cavité, cette dernière est excitée par une lampe à incandescence HEP3965 Thorlabs émettant entre 0,9 et 2,8 μm et la lumière est analysée par le spectromètre et la caméra¹⁰ présentés partie 1.2.2.1. La longueur de cavité est calculée à partir du FSR, l'écart entre deux modes $m + l = 0$ (cf. équation 3.44) :

$$L \approx \frac{\lambda^2}{2\text{FSR}_\lambda} \quad (3.59)$$

Augmenter la longueur de cavité déplace les résonances vers de plus hautes longueurs d'ondes. Des spectres typiques sont présentés figure 3.28. La transmission d'un mode $m + l = 0$ reste très proche d'une lorentzienne sur plus d'un ordre de grandeur en intensité ce qui est en accord avec la relation 3.49.

10. Caméra NIRvana:640LN et spectromètre IsoPlane 320 Princeton Instruments

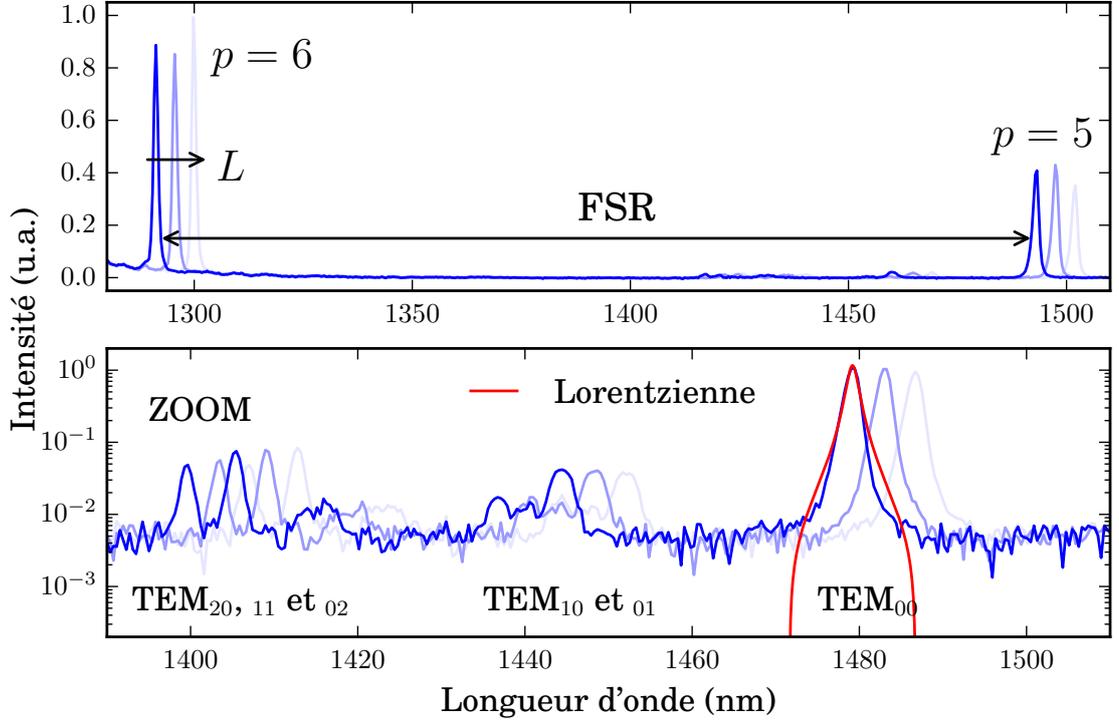


FIGURE 3.28 – Spectres de transmission en lumière blanche d’une cavité optique pour trois longueurs de cavité légèrement différentes (plus L est grande, plus les spectres sont clairs). La bande de réflexion des miroirs est située entre 1250 et 1550 nm. Comme l’injection et la collection privilégient les modes fondamentaux (tels que $l + m = 0$), l’intensité est représentée en échelle logarithmique pour distinguer plus nettement les autres résonances. La courbe en rouge est un ajustement lorentzien autour du maximum de transmission.

L’écart entre deux résonances successives telles que $\Delta(l + m) = \pm 1$ donne le rayon de courbure du miroir :

$$\mathcal{R} = \frac{L}{1 - G} = \frac{L}{\sin^2\left(2\pi\frac{L}{c}(\nu_{p,l+m+1} - \nu_{p,l+m})\right)} \quad (3.60)$$

Il est aussi possible d’en déduire directement la longueur de Rayleigh et la largeur minimale du mode :

$$\begin{cases} z_R &= \frac{L}{\tan\left(2\pi\frac{L}{c}(\nu_{p,l+m+1} - \nu_{p,l+m})\right)} \\ w_0 &= \sqrt{\frac{\lambda L}{\pi \tan\left(2\pi\frac{L}{c}(\nu_{p,l+m+1} - \nu_{p,l+m})\right)}} \end{cases} \quad (3.61)$$

Une levée de dégénérescence des résonances $l + m = \text{cte}$ est observée. Elle provient d’une asymétrie de la cavité due, entre autres, à une ellipticité du miroir concave.

D’après la figure 3.28, l’écart entre les modes $l + m = 2$ et $l + m = 0$ est compris

entre 64 et 79 nm. Ainsi, l'écart $\nu_{p,l+m+1} - \nu_{p,l+m}$ est compris entre 9,2 et 11,5 THz. Le mode $p = 5$ correspond à une longueur de cavité de 3,7 μm ce qui donne d'après la formule 3.60 un rayon de courbure entre 6,1 et 8,6 μm . D'après 3.61, la longueur de Rayleigh est de $5,0 \pm 0,7 \mu\text{m}$ et la largeur du mode vaut $1,5 \pm 0,1 \mu\text{m}$ à 1478 nm ($w_0 \sim \lambda$).

Une mesure plus précise de la longueur peut aussi être obtenue par un ajustement global des résonances sur un balayage de la transmission par la longueur de cavité comme présenté figure 3.29. Ces données proviennent d'une micro-cavité dont le miroir concave a un rayon de courbure de l'ordre de 50 μm , elles ont été utilisées pour étalonner l'actionneur piézoélectrique (voir annexe D.2.1).

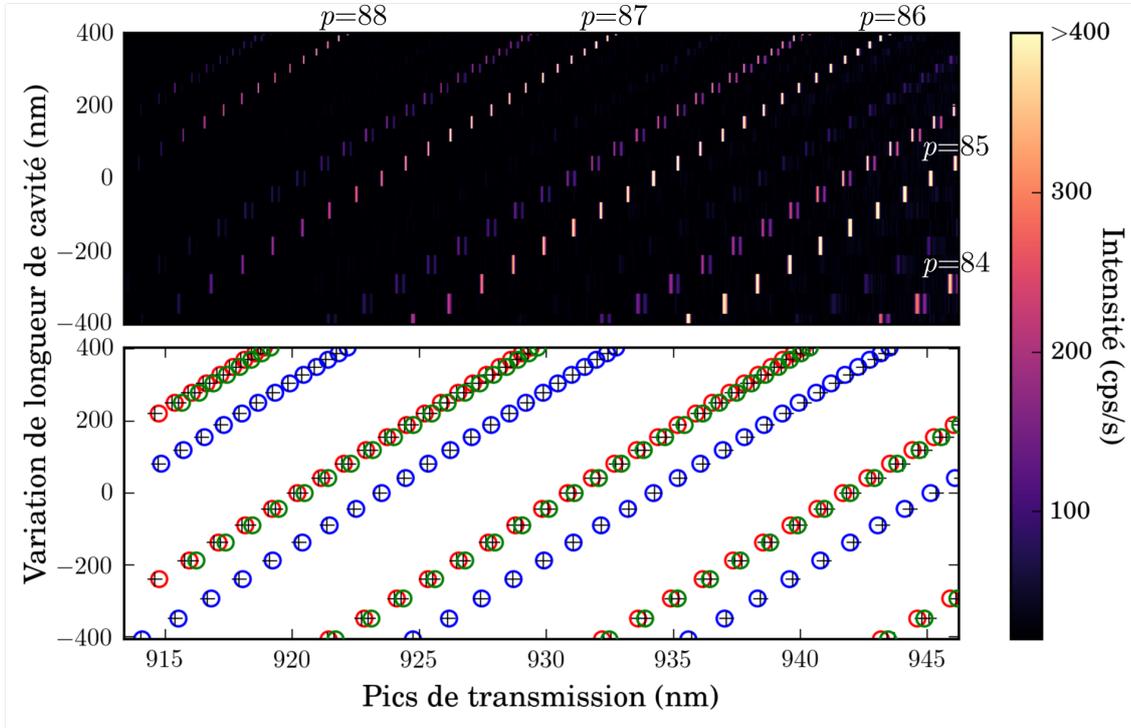


FIGURE 3.29 – **En haut** : Spectres de transmission en lumière blanche d'une cavité optique en fonction de la longueur de cavité pour $p = 84$ à $p = 88$. Les pas de déplacements correspondent à environ 37 nm (soit 20 V en entrée de l'actionneur). Le rayon de courbure du miroir concave est d'environ 50 μm et la bande de réflexion des miroirs est située entre 840-980 nm. **En bas** : les résonances ont été relevées pour $(l, m) = (0, 0)$, $(0, 1)$ et $(1, 0)$ et sont représentées par des cercles colorés. La totalité du balayage en longueur de cavité est ajustée avec seulement 4 paramètres optimisant d'une évolution quadratique de la longueur en fonction de la tension appliquée à l'actionneur piézoélectrique et deux rayons de courbure \mathcal{R}_l et \mathcal{R}_m reflétant une excentricité du miroir concave. Le plus petit mode p observé est fixé avant l'ajustement par analyse du FSR.

Les relations développées dans cette partie sont relativement bien vérifiées par les

cavités utilisées dans cette thèse. Ainsi, l'analyse de leur transmission donne accès à la longueur de cavité et au rayon de courbure du miroir concave. Or l'estimation de ces paramètres géométriques est cruciale pour calculer le volume de cavité, un paramètre déterminant dans les expériences de CQED.

3.2.2 Minimisation du volume de mode

Comme décrit dans la partie 3.1.1, l'accélération du taux d'émission d'un émetteur en cavité est pilotée par le facteur de Purcell $F_p = \frac{3}{4\pi^2} Q_{\text{cav}} \frac{(\lambda/n)^3}{V_{\text{eff}}}$. Ce facteur est inversement proportionnel au volume occupé par l'énergie du mode de cavité résonant avec l'émetteur. Il est défini formellement par la formule suivante (voir partie 3.2.2.3) :

$$V_{\text{eff}} \equiv \frac{\int d^3\mathbf{r} |n(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r})|^2}{\max(|n(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r})|^2)} \quad (3.62)$$

Cette définition est cohérente avec celle proposée dans la partie 3.1.1.1.

Si la longueur de cavité est inférieure à la longueur de Rayleigh, la largeur du mode est quasiment constante. Sous cette approximation, le mode est cylindrique et le volume occupé par son énergie s'écrit :

$$V_{\text{eff}} \approx \pi \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}} \right)^2 \frac{L}{2} = \frac{\lambda}{4} L^{3/2} \sqrt{\mathcal{R} - L} \quad (3.63)$$

Pour augmenter le facteur de Purcell, il s'agit de diminuer au maximum la longueur de la cavité et le rayon de courbure du miroir concave. Des micro-miroirs ont été fabriqués dans ce but par ablation laser à l'extrémité d'une fibre optique.

3.2.2.1 Fabrication des micro-miroirs

Pour fabriquer les micro-miroirs, une dépression concave est d'abord usinée sur un support de faible encombrement (ici, l'extrémité d'une fibre optique). Puis plusieurs couches de diélectriques sont déposées pour former un miroir de Bragg et atteindre une réflectivité proche de 1 aux longueurs d'onde désirées. Différentes techniques existent pour usiner cette dépression concave sur du verre : mécaniquement [228], par gravure acide [229] ou faisceau d'ions [230, 231] ou par ablation laser [36]. Cependant, cette dernière se distingue par une rugosité de surface remarquablement faible et son bon contrôle de la taille et de la forme des miroirs. Elle consiste à sublimer une partie de la silice composant la fibre optique par une impulsion d'un laser CO₂ pour former une dépression concave (voir figure 3.30). La surface en fusion de cette dépression est lissée par la tension de surface ce qui donne une rugosité de l'ordre de 0,2 nm [36]. Une image typique d'une extrémité de fibre usinée est présentée sur la figure 3.31.



FIGURE 3.30 – Vue d’artiste de l’impact laser sur l’extrémité d’une fibre optique. Crédits : A. Jeantet [40].

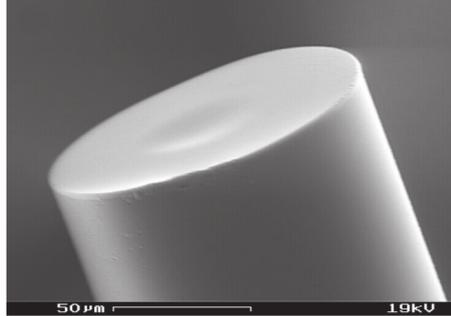


FIGURE 3.31 – Image de l’extrémité d’une fibre usinée par laser CO_2 réalisée par microscopie électronique à balayage. Tirée de [36].

La fabrication de micro-cavités fibrées en usinant des micro-miroirs par ablation laser a été développée au sein de l’équipe de Jakob Reichel du laboratoire Kastler Brossel et perfectionnée en collaboration avec l’équipe de David Hunger du *Karlsruher Institut für Technologie*. Ces micro-cavités, destinées initialement à la physique des atomes froids, trouvent aussi des applications dans le cadre de la détection de particule unique, du filtrage optique haute-résolution, des sources de photons uniques couplées à une fibre optique ou encore du couplage entre une cavité et un émetteur à l’état solide. L’objectif de ce type de cavité est d’atteindre une finesse élevée pour une faible largeur de mode et surtout d’acquies une grande souplesse dans le positionnement de la cavité (accord spectral et spatial avec l’émetteur).

Dans le cadre de ce travail, ce n’est pas la largeur du mode qui doit être minimisée mais son volume. Ainsi, il faut minimiser à la fois \mathcal{R} et L . Le laser est donc focalisé à la surface de la fibre et sa puissance et la durée d’exposition sont adaptées pour un usinage à la limite de diffraction. Le dispositif d’ablation laser est détaillé dans l’annexe C.1.1 tandis que le protocole de fabrication des micro-miroirs de cette thèse est précisé dans la partie suivante.

Spécificités des fibres usinées Les fibres monomodes Cu1300 et multimodes Cu50-125 IVG Fiber utilisées sont adaptées aux bandes de transmission télécoms entre 1300 et 1600 nm. Leur revêtement de protection est en cuivre en prévision d’un passage sous ultra-vide pour déposer les couches diélectriques formant le miroir de Bragg. Elles ont un diamètre de $165\ \mu\text{m}$ avec le revêtement et de $125\ \mu\text{m}$ une fois dénudées. Les fibres monomodes autorisent un diamètre de mode de $9,0 \pm 0,5\ \mu\text{m}$ (soit une largeur de faisceau de $4,5\ \mu\text{m}$) et les multimodes ont un cœur de $50\ \mu\text{m}$. Cela correspond à une ouverture numérique de 0,13 pour les monomodes et de 0,22 pour les multimodes.

Le revêtement en cuivre est dissout sur une longueur d’environ 2 cm dans une

solution concentrée de chlorure de fer III. Après avoir été nettoyées précautionneusement à l'aide d'eau distillée puis d'isopropanol, les fibres sont clivées à moins de 4 mm du revêtement. Cette distance est adaptée au support utilisé dans le cadre des expériences de CQED pour minimiser les casses. En effet, la fibre dépassera d'environ 0,5 mm du support et sera collée sur 3,5 mm. Un recouvrement entre le revêtement et la colle consolide significativement la fibre. Pour obtenir des micro-miroirs suffisamment symétriques l'angle de clivage doit être inférieur à $0,5^\circ$. Le revêtement en cuivre favorisant les déformations plastiques, les fibres ont été clivées¹¹ en leur appliquant une tension pour les redresser avant de les sectionner.

Le laser CO_2 est centré sur le cœur de la fibre puis focalisé sur la surface clivée. La dépression concave est créée par un tir unique d'une puissance entre 301 à 333 mW et d'une durée comprise entre 2,3 à 15,9 ms. Les durées d'exposition sont modifiées pour s'adapter aux variations de dépassement des fibres sur le support. En effet, la proximité du support change la dissipation de la chaleur dans la fibre et modifie la puissance nécessaire à l'usinage [166]. De plus, si la polarisation du laser n'est pas parfaitement circulaire, l'onde stationnaire qui s'établit engendre de fortes variations d'intensité en fonction de la position de la fibre.

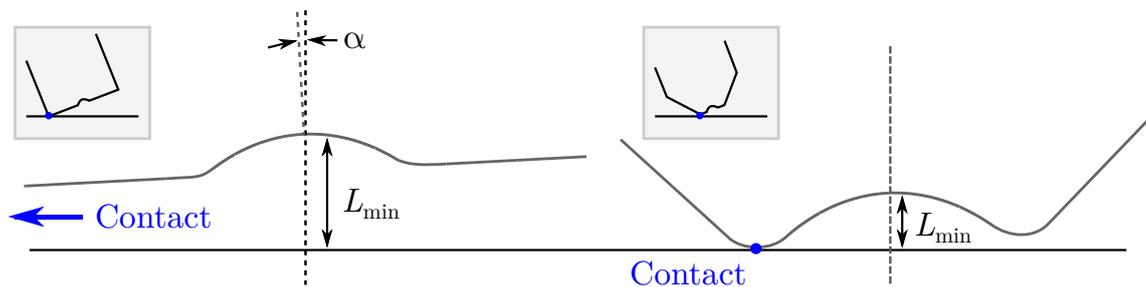


FIGURE 3.32 – **À gauche** : Contact entre la fibre usinée et le miroir plan. Lorsque la fibre est légèrement inclinée, la longueur de cavité est limitée à L_{\min} . **À droite** : Même situation lorsque la fibre est chanfreinée par ablation laser.

L'extrémité de la fibre est ensuite taillée en pointe pour minimiser la longueur de cavité lorsque le micro-miroir touche le miroir plan [40]. En effet, si l'axe de la fibre n'est pas aligné parfaitement avec la normale du miroir plan, la périphérie de la fibre limite la longueur de cavité comme représenté sur la figure 3.32. Les bords de la fibre sont chanfreinés par environ 300 impacts laser agencés en cercles centrés sur le micro-miroir. Après cette étape, seul un mince anneau de la surface clivée reste intact et forme une plateforme autour de la dépression concave. Cette plateforme et la fibre chanfreinée sont visibles de face et de côté sur les photographies figure 3.33.

L'alignement de la fibre dans le cryostat est réalisé manuellement sans vis de réglage, un décalage d'environ 5° avec la normale du miroir plan est envisageable (voir figure C.11). Si la fibre n'est pas taillée en pointe, la longueur de cavité est

11. Cliveuse : FK12 angled fiber cleaver PK technology

augmentée de $5,5 \mu\text{m}$. Dans le cas de la plateforme visible figure 3.33, cette longueur est limitée à $0,5 \mu\text{m}$.

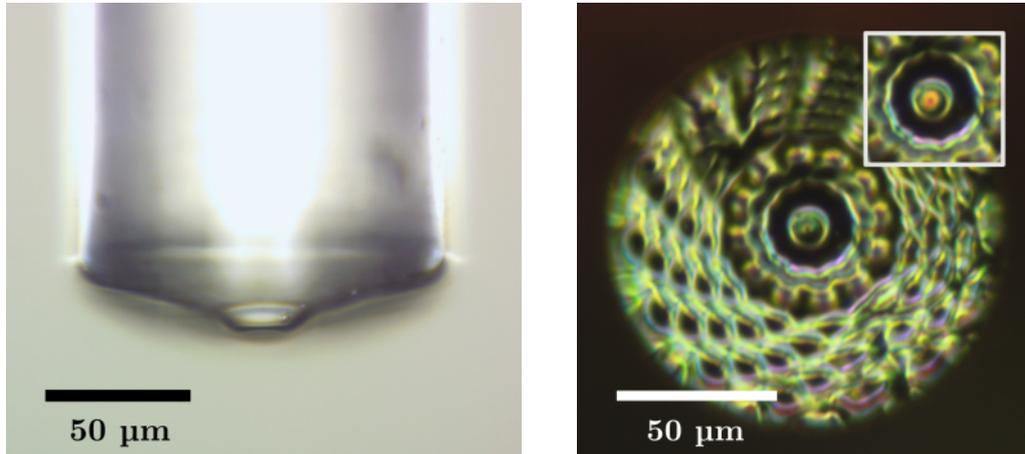


FIGURE 3.33 – **À gauche** : Profil latéral de la fibre usinée en réflexion. La plateforme au sommet de la fibre masque la dépression concave. **À droite** : Profil de face de la fibre usinée en champ sombre. La dépression concave est entourée d'une plateforme plane. Les bosselures sont dues aux multiples impacts laser lors de la réalisation du chanfrein. Dans l'encart, de la lumière blanche est envoyée dans la fibre optique : même la tache lumineuse peut paraître décalée par un effet de parallaxe, la dépression concave est centrée au micromètre près sur le cœur de la fibre.

Enfin, les fibres usinées sont confiées à l'entreprise Laseroptik GmbH qui se charge du dépôt des couches diélectriques. Celles-ci sont réalisées par pulvérisation par faisceau d'ions pour obtenir une bonne réflectivité, de faibles pertes et suivre parfaitement la surface du substrat. Les miroirs plans proviennent du même dépôt. Les propriétés des miroirs de Bragg réalisés sont détaillées dans la partie 3.2.2.2.

Pour s'assurer du bon déroulement de l'ablation laser et choisir le micro-miroir le plus adapté aux expériences de CQED parmi les 84 fabriqués, toutes les dépressions concaves ont été soumises à l'étude profilométrique développée dans la partie suivante.

Géométrie des micro-miroirs Chaque dépression concave créée par ablation laser est sondée par un interféromètre de Mirau pour obtenir son profil surfacique (voir annexe C.1.1). L'intensité relevée sur la caméra du dispositif C.1 provient de l'interférence entre les ondes réfléchies par la surface de la fibre et une surface de référence à l'intérieur de l'objectif. En notant $z(x, y)$ le profil de la fibre, cette intensité s'écrit :

$$I(x, y) = I_0 \left(1 + \cos \left(\frac{4\pi}{\lambda_M} z(x, y) + \phi_0 \right) \right) \quad (3.64)$$

où λ_M est la longueur d'onde de la diode laser incidente et vaut 515 nm . La phase ϕ_0 s'annule à la distance focale de l'objectif de Mirau. Quelques exemples de profils

acquis de cette manière sont représentés sur la figure C.3. Le profil de la fibre est ensuite reconstruit grâce à un algorithme minimisant l'erreur sur la phase [232] en prélevant 6 interférogrammes déphasés de $\frac{\pi}{2}$ (la fibre est translatée pour chaque acquisition de $\frac{\lambda_M}{8} = 64$ nm). Un exemple de profil calculé de cette manière est donné à la figure 3.35a. La résolution atteinte par une mesure de ce type est de 1,4 nm en profondeur et 0,8 μm latéralement [166].

Les caractéristiques géométriques des dépressions concaves fabriquées dépendent drastiquement d'un certain nombre de paramètres expérimentaux [233] dont principalement la puissance et la largeur du faisceau laser et la durée d'exposition. Cependant, la plupart des profils rencontrés sont quasiment gaussiens [233] comme schématisé à la figure 3.34. Or, dans le cas d'un profil gaussien, la profondeur L_g , le rayon de courbure \mathcal{R} et le diamètre D des dépressions concaves sont liés par la relation :

$$L_g \approx \frac{D^2}{8\mathcal{R}} \quad (3.65)$$

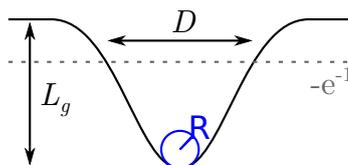


FIGURE 3.34 – Schéma d'une dépression concave de profil gaussien. L_g désigne la profondeur maximale, \mathcal{R} le rayon de courbure au centre (lorsque $z = L_g$) et D le diamètre lorsque $\frac{z}{L_g} = -e^{-1}$.

Pour éviter un biais provenant d'un écart au profil gaussien, les rayons de courbure ont été déterminés par un ajustement parabolique local et les profondeurs par la différence entre le minimum et le maximum du profil. Les rayons de courbure mesurés sur 84 fibres s'étalent entre 7,3 et 18,5 μm pour une moyenne de 9,9 μm et les profondeurs entre 0,7 et 2,4 μm pour une moyenne de 1,5 μm . Le diamètre varie peu et reste égal à 11 ± 1 μm .

Une lentille asphérique d'ouverture numérique $\text{NA} \approx 0,67$ est utilisée pour focaliser le faisceau laser CO_2 de longueur d'onde $\lambda_{\text{CO}_2} = 10,6$ μm . La largeur du faisceau laser au point focal vaut $w_{0,\text{CO}_2} = \frac{\lambda_{\text{CO}_2}}{2\text{NA}} \approx 7,9$ μm . Aux effets non-linéaires près, les diamètres des micro-miroirs atteignent la limite de résolution du système.

Du fait d'un défaut d'alignement, de polarisation ou d'une asymétrie du transfert thermique lors de l'ablation laser, une légère ellipticité des dépressions concaves apparaît. Pour la prendre en compte, l'ajustement des dépressions concaves inclut deux rayons de courbure : \mathcal{R}_{min} (petit axe) et \mathcal{R}_{max} (grand axe). L'écart entre ces

rayons de courbure est en général inférieur à 10% et l'excentricité moyenne vaut $\sqrt{1 - \frac{\mathcal{R}_{\min}}{\mathcal{R}_{\max}}} \approx 0,29$.

Après dépôt diélectrique, la surface du micro-miroir reste proche de celle après ablation laser. Un dépôt de 20 couches sur une cavité de 5 μm de rayon de courbure gravée par faisceau d'ions laisse la forme inchangée sur 80% de son diamètre [234]. Une comparaison a été réalisée entre la mesure par interféromètre de Mirau après l'ablation et une mesure par AFM après dépôt sur la fibre n°8/84 (les incertitudes proviennent de l'ajustement) :

TABLE 3.3 – Paramètres caractéristiques de la géométrie du micro-miroir n°8/84 avant et après dépôt des couches diélectriques.

Dépôt	\mathcal{R}_{\min} (μm)	\mathcal{R}_{\max} (μm)	L_g (μm)
Avant	$8,4 \pm 0,3$	$9,9 \pm 0,3$	$1,7 \pm 0,1$
Après	$8,05 \pm 0,02$	$9,04 \pm 0,02$	$1,579 \pm 0,006$

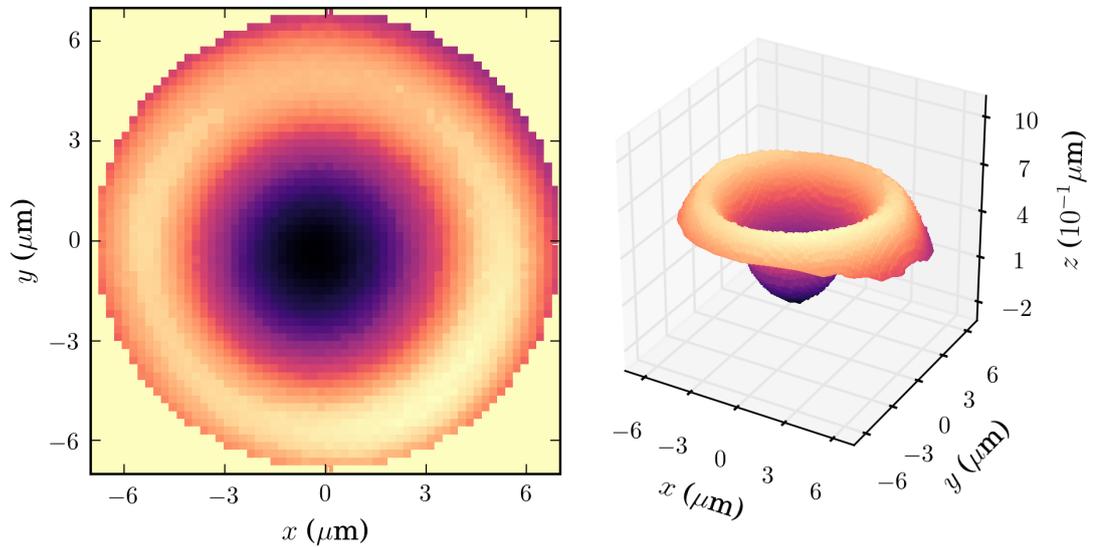
Les paramètres géométriques de la structure varient de moins de 10% après le dépôt.

Minimiser le volume de la cavité (équation 3.63) revient à minimiser la longueur de cavité et le rayon de courbure du micro-miroir. Une fois les bords de la fibre chanfreinés, la longueur de cavité est principalement limitée au contact par la profondeur L_g de la dépression concave. Pour diminuer cette profondeur au maximum, la plateforme entourant la dépression concave (voir figure 3.33) a été abaissée pour une partie des fibres. Pour cela, une vingtaine d'impacts de plus faible puissance ont été tirés directement sur la plateforme lors de l'usinage des fibres. Cette étape supplémentaire ne concerne qu'une moitié des micro-miroirs fabriqués dont la fibre n°55/84 utilisée pour obtenir les résultats présentés dans cette thèse. Les caractéristiques géométriques de cette fibre sont détaillées figure 3.35. Elle présente un écart un peu plus prononcé avec le profil gaussien à cause de l'abaissement de la plateforme.

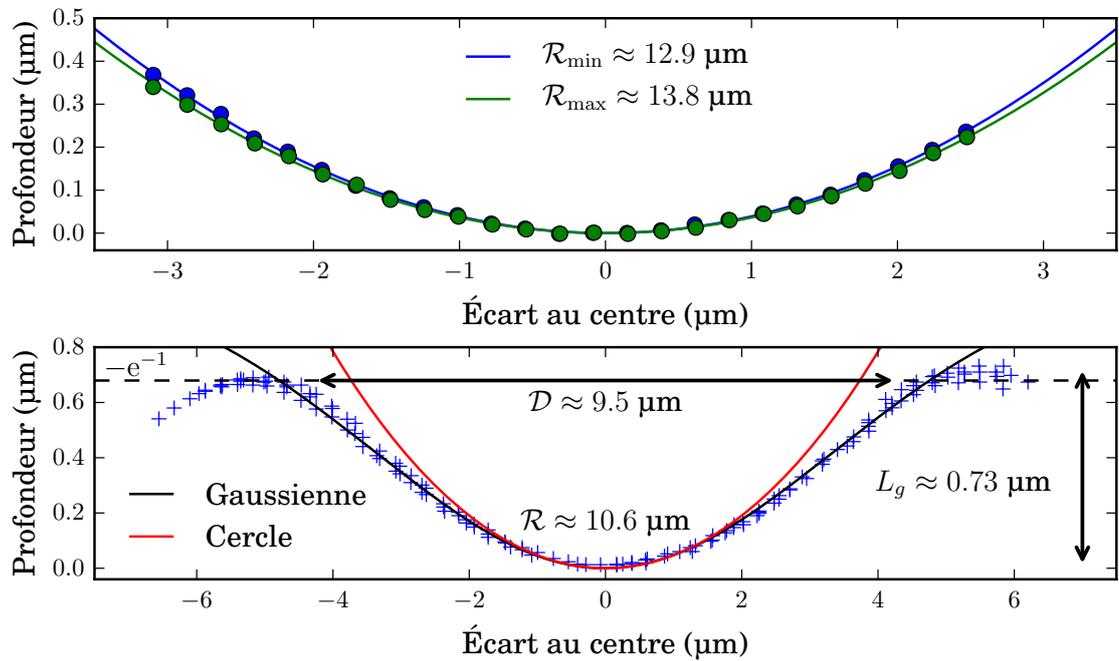
Les micro-miroirs se caractérisent non seulement par la forme de leur concavité mais aussi par les couches diélectriques qui les rendent réfléchissants. Elles font l'objet de la partie suivante.

3.2.2.2 Miroir de Bragg

Un miroir de Bragg est constitué d'un empilement de couches diélectriques d'indices de réfractifs différents permettant de réfléchir la lumière incidente par interférences constructives. Le choix des couches diélectriques déposées sur la dépression concave est critique car il conditionne à la fois l'emplacement et l'étendue de la bande de réflexion du micro-miroir et sa réflectivité. En effet, l'objectif des



(a) Profil complet avec la profondeur en échelle de couleurs et en perspective.



(b) **En haut** : Ajustements paraboliques sur une plage de $6\ \mu\text{m}$ selon le petit axe et le grand axe de la dépression elliptique. **En bas** : Ajustement gaussien sur une plage de $10\ \mu\text{m}$ sur les données issues de 4 projections de la surface sur les directions $0, \frac{\pi}{4}, \frac{\pi}{2}$ et π . \mathcal{R} et L_g ne satisfont pas la relation 3.65 puisque la plateforme a été abaissée par des impacts laser supplémentaires.

FIGURE 3.35 – Profil de la dépression concave de la fibre n°55/84 obtenu par interféromètre de Mirau avant dépôt du miroir de Bragg.

micro-cavités est d'exacerber l'effet Purcell qui, dans le cas d'un émetteur soumis à un déphasage pur important, est proportionnel à un facteur de qualité effectif (voir partie 3.1.2.2 et [34]). Ce facteur de qualité effectif $Q_{\text{eff}} = (Q_{\text{ém}}^{-1} + Q_{\text{cav}}^{-1})^{-1}$ est une combinaison du facteur de qualité de l'émetteur et de la cavité. Ainsi, le miroir de Bragg est conçu pour que le facteur de qualité le plus bas atteint par la cavité, soit comparable au meilleur facteur de qualité des émetteurs.

Le meilleur facteur de qualité $Q_{\text{ém}}$ observé sur un échantillon similaire à ceux utilisés dans cette thèse est de l'ordre de 30000 [235, 236] pour une émission à $\lambda_{\text{ém}} \sim 1,3 \mu\text{m}$. Cela impose une finesse $\mathcal{F} = \frac{Q_{\text{ém}}}{p} \sim 6000$ car le premier mode accessible à $\lambda_{\text{ém}}$ est $p = 5$. Le coefficient de réflexion des miroirs R_m doit donc être de l'ordre de 0,9995.

En outre, pour des longueurs de cavité de l'ordre de la longueur d'onde, la longueur de pénétration du champ dans les miroirs diélectriques a une importance non négligeable. Dans le cas où les micro-miroirs présentés dans la partie précédente sont au contact du miroir plan, cette longueur de pénétration devient même prépondérante. Elle constitue donc un critère supplémentaire lors de l'agencement des couches.

Couches diélectriques et réflectivité Les miroirs de Bragg utilisés dans cette thèse sont formés d'une alternance de 32 couches de silice (SiO_2) et d'oxyde de titane (TiO_2) afin d'atteindre un coefficient de réflexion supérieur à 0,9993 (c'est-à-dire une transmission inférieure à 700 ppm¹²) pour couvrir les bandes télécoms entre 1250 et 1550 nm. Les pertes induites par le miroir sont négligées ici et abordées partie 3.2.3.2. Ces deux matériaux ont été choisis pour leur faible absorption dans cette gamme de longueurs d'onde et pour leur grande différence d'indice optique :

$$n_{\text{SiO}_2}(1386 \text{ nm}) = 1,477 \text{ et } n_{\text{TiO}_2}(1386 \text{ nm}) = 2,34 \quad (3.66)$$

Les 16 couches en surface des miroirs ont une épaisseur de $\lambda_B/4n$ avec $\lambda_B = 1385,7 \text{ nm}$ pour que les interférences soient constructives en réflexion. Les épaisseurs des 16 couches plus en profondeur ont été optimisées numériquement pour élargir la bande de réflexion afin de couvrir une grande partie des bandes télécoms les plus couramment utilisées¹³ (voir la figure 3.36). La structure résultante mesure un peu plus de $6 \mu\text{m}$ d'épaisseur.

12. ppm : partie par million, 10^{-6}

13. La bande O s'étale de 1260 à 1360 nm et la C de 1530 à 1565 nm [108].

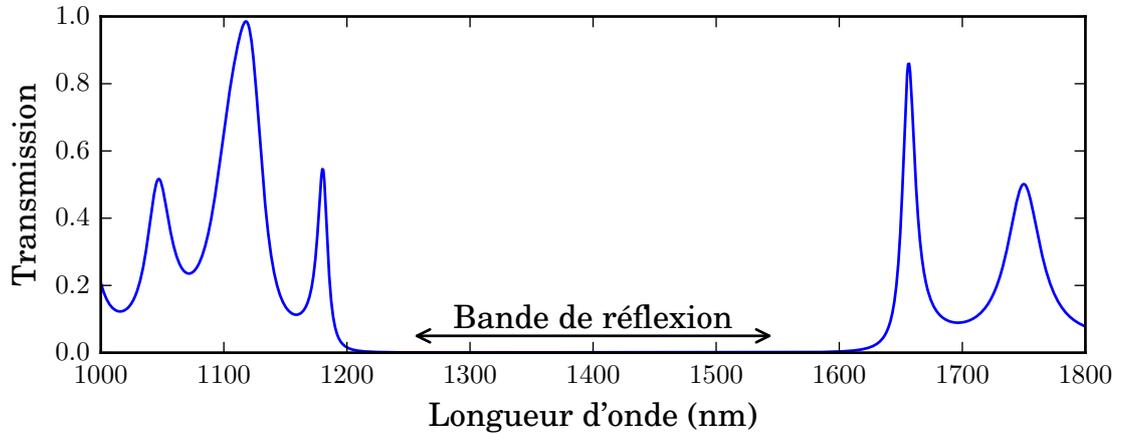


FIGURE 3.36 – Calcul numérique de la transmission en intensité des miroirs diélectriques.

Comme l'échantillon de CNT est déposé sur le miroir plan et qu'il doit être placé à un ventre de champ dans la cavité, la couche diélectrique la plus en surface est de faible indice (SiO_2). Cela a pour inconvénient d'adapter l'impédance optique avec celle de l'air et donc d'augmenter la longueur de pénétration du champ dans le miroir [237]. Ce problème sera abordé dans la partie suivante 3.2.2.2. Sauf mention contraire, les CNT sont déposés dans une matrice de polystyrène (PS) afin de stabiliser leurs émissions. L'indice optique du PS étant plus élevé que celui de la silice ($n_{\text{PS}} \approx 1,6$), la couche de PS est choisie suffisamment fine pour que les CNT restent dans un ventre de champ en cavité. L'épaisseur typique des dépôts est de 100 nm. D'après la simulation à la figure 3.37, le dépôt modifie sensiblement la transmission du miroir¹⁴ : elle passe de 615 ppm à 412 ppm pour une longueur d'onde de 1310 nm et une épaisseur de PS de 100 nm.

14. La couche de PS déposée a un indice plus élevé que la silice ce qui désadapte l'impédance optique et augmente la réflectivité des miroirs.

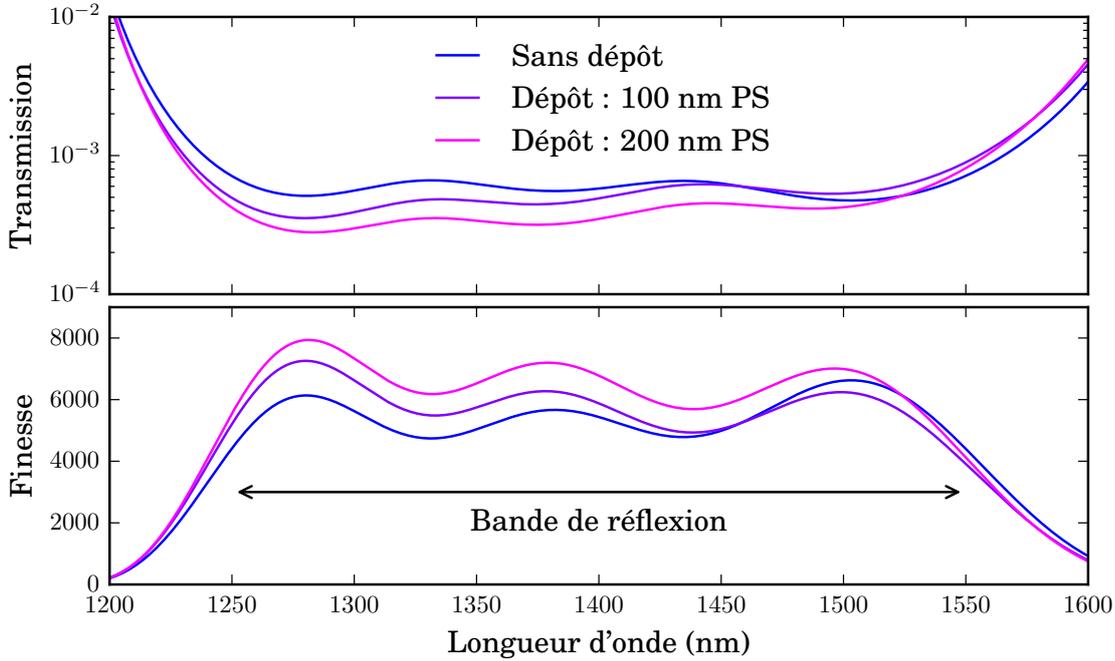


FIGURE 3.37 – **En haut** : Calcul numérique de la transmission en intensité zoomée sur la bande de réflexion des miroirs diélectriques avec un dépôt d'une certaine épaisseur de PS. **En bas** : Calcul numérique de la finesse zoomée sur la bande de réflexion d'une cavité comportant un miroir diélectrique sans dépôt et un miroir avec une certaine épaisseur de PS.

Pour résumer, la cavité optique est composée d'un micro-miroir concave et d'un miroir plan sur lesquels a été déposé un même jeu de couches diélectriques. Toutefois, les propriétés du miroir plan sont modifiées par le dépôt de l'échantillon assimilable à une couche de PS de 100 nm. Leurs profils d'indice de réfraction sont tracés figure 3.38.

Profondeur de pénétration L'empilement de couches diélectriques autorise le champ à pénétrer sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde dans les miroirs. Ce phénomène augmente le volume occupé par l'énergie des modes de cavité qui n'est plus équivalent au volume géométrique circonscrit par les deux miroirs. La longueur de pénétration L_p dans les miroirs est calculée pour estimer au mieux le volume de mode. En notant z la position par rapport à la surface du miroir et n_m l'indice optique moyen dans le miroir ($n_m \approx 2 \frac{n_{\text{SiO}_2} n_{\text{TiO}_2}}{n_{\text{SiO}_2} + n_{\text{TiO}_2}} = 1,81$), l'amplitude du champ en présence d'un miroir diélectrique peut être modélisée de la manière suivante :

$$E = \begin{cases} E_0 \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} z + \phi_0\right) & \text{pour } z < 0 \text{ (dans l'air)} \\ E_0 \cos\left(\frac{2\pi n_m}{\lambda} z + \phi_0\right) e^{-L/L_p} & \text{pour } z > 0 \text{ (dans le miroir)} \end{cases} \quad (3.67)$$

Le champ à proximité des miroirs a été calculé numériquement pour $\lambda = 1310$ nm à partir de matrices de transfert optique de propagation des champs E et B . La valeur absolue du champ E est représentée sur la figure 3.38. Un ajustement à partir de la formule 3.67 a été réalisé avec L_p et ϕ_0 comme paramètres libres. Comme mentionné précédemment, la dernière couche déposée est de faible indice, ce qui maximise le champ à la surface du miroir. L'ajout d'une couche de PS a pour effet de décaler légèrement ce maximum dans le miroir (ϕ_0 diminue) et de diminuer la pénétration du champ. Dans les deux cas, la longueur de pénétration est de l'ordre de $1 \mu\text{m}$.

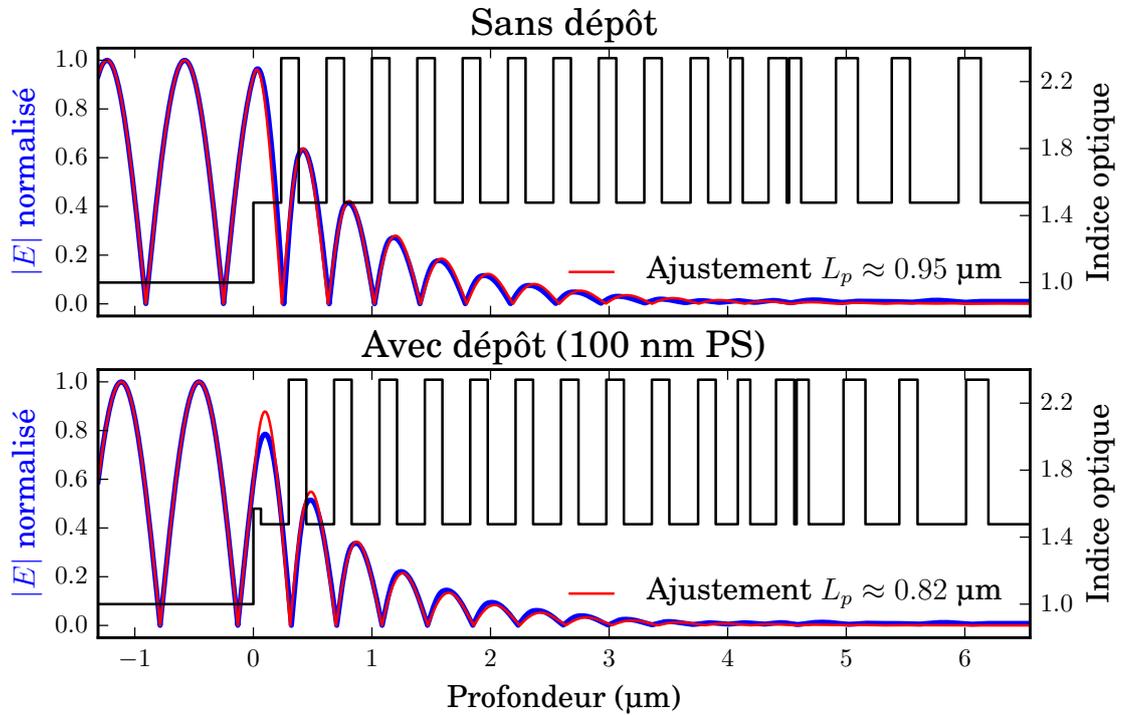


FIGURE 3.38 – Valeur absolue de l'amplitude du champ résultant d'une onde plane progressive en incidence normale en présence des miroirs définis dans la partie 3.2.2.2 en fonction de la position par rapport à la surface de ces derniers. L'indice optique a été tracé comme référence en profondeur, son ordonnée est à droite.

Du fait de la longueur de pénétration, la longueur de cavité définie par l'équation 3.59 définissant le FSR est différente de la distance entre les deux surfaces des miroirs L_{air} . La simulation de la transmission de la cavité pour $\lambda = 1310$ nm en fonction de L_{air} (figure 3.39) donne :

$$L_{\text{FSR}} = L_{\text{air}} + 2,24 \mu\text{m} \quad (3.68)$$

L'écart entre L_{FSR} et L_{air} est un peu plus élevé que la somme des longueurs de pénétration données à la figure 3.38 ($L_{p,2} + L_{p,1} \approx 0,95 + 0,82 = 1,77 \mu\text{m}$), car le

déphasage ϕ_0 décale le maximum de champ dans les miroirs.

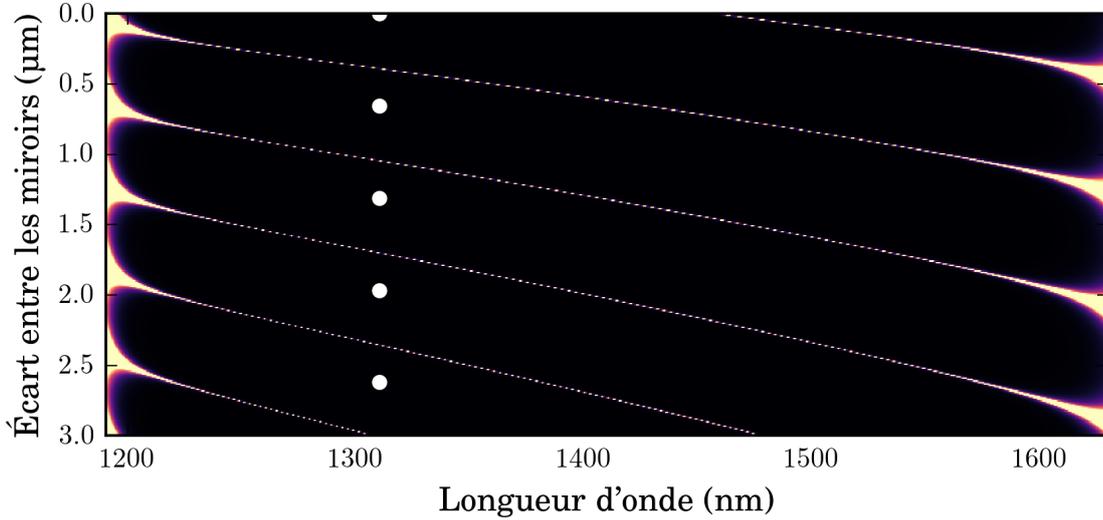


FIGURE 3.39 – Calcul numérique des spectres de transmission de la cavité en fonction de l'écart entre les miroirs L_{air} . Les points blancs pour $\lambda = 1310$ nm représenteraient l'emplacement des résonances sans longueur de pénétration : $L_{\text{air}} = p\frac{\lambda}{2}$. La longueur de cavité calculée par le FSR est $2,24 \mu\text{m}$ plus grande que l'écart entre les miroirs L_{air} .

Des simulations par éléments finis du champ en cavité prenant en compte le profil de la fibre n°55/84 issu des données 3.35 sont présentées à la figure 3.40. Ces simulations sont à symétrie axiale et l'agencement des couches diélectriques a été simplifié à un empilement de 24 couches d'épaisseurs $\lambda/4n$ ¹⁵. Une épaisseur de 100 nm de PS a été prise en compte sur le miroir plan. Lorsque le micro-miroir est au contact du miroir plan, l'écart entre les miroirs est limité par la profondeur de la dépression concave ($L_{\text{air}} = L_g$). Dans ces conditions, une résonance est observée à $\lambda = 1457$ nm pour le mode $p = 4$.

La profondeur du micro-miroir n°55/84 étant de $0,73 \mu\text{m}$, la profondeur de pénétration est de $2,2 \mu\text{m}$. Cela correspond aux simulations 3.38 et 3.39 utilisant la structure de Bragg complète mais supposant les miroirs plans.

15. Cela modifie la finesse de la cavité et l'étendue en longueur d'onde de la bande de réflectivité mais cela n'influe pas sur la longueur de pénétration. La différence avec le miroir de Bragg réel n'intervient qu'à une profondeur supérieure à 3 fois la longueur de pénétration estimée.

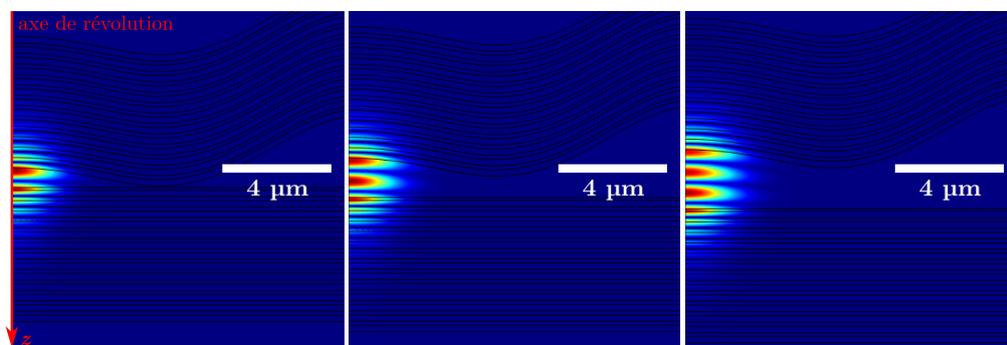


FIGURE 3.40 – **De gauche à droite** : Simulations des modes $p=4, 5$ et 6 résonants à une longueur d’onde d’environ 1460 nm, avec le profil du micro-miroir n°55/84 issu des données figure 3.35. Elles ont été calculées sur COMSOL Multiphysics en considérant une symétrie axiale : les ordonnées correspondent à l’axe optique (z) et les abscisses à l’écart à cet axe (r). Le mode 4 est le premier mode accessible dans la bande de réflexion (miroir plan et micro-miroir au contact).

La figure 3.40 confirme l’importance de la longueur de pénétration dans la caractérisation des modes : il n’est plus possible de lier le nombre de nœuds de champ à l’entier p définissant le mode. Le champ déborde significativement de la cavité géométrique, ce qui invalide la définition naïve du volume de mode donnée en introduction (relation 3.2.2). Une définition plus précise de ce volume fait l’objet de la sous-partie suivante.

3.2.2.3 Volume de mode effectif

Le volume de mode effectif est défini dans la relation 3.62 à partir de la densité d’énergie. Or cette dernière varie en n^2 ce qui rend d’autant plus significative l’énergie stockée dans les miroirs sur la longueur de pénétration. L’indice moyen ressenti par le champ dans les miroirs est d’environ $1,7$: pour une longueur et un champ équivalent, les couches diélectriques peuvent stocker presque 3 fois plus d’énergie que le vide. Pour prendre en compte cet effet, une nouvelle longueur L_{eff} est définie comme suit :

$$L_{\text{eff}} = \frac{\int dz |n(z)E(z)|^2}{\max(|n(z)E(z)|^2)} \quad (3.69)$$

Comme illustré à la figure 3.41 pour une onde plane, la longueur L_{eff} est une fonction affine de la séparation L_{air} entre les miroirs. Pour $\lambda = 1310$ nm, L_{eff} s’exprime ainsi :

$$L_{\text{eff}} = 0,24L_{\text{air}} + 0,59 \mu\text{m} \quad (3.70)$$

La pente d’environ $1/4$ provient à la fois d’un facteur $1/2$ dû à la valeur moyenne de $|E(z)|^2$ (valeur moyenne d’un sinus carré) et d’un facteur $\sim 1/2$ correspondant au rapport entre le maximum de la densité d’énergie dans l’air et celui dans les miroirs (voir la figure 3.41).

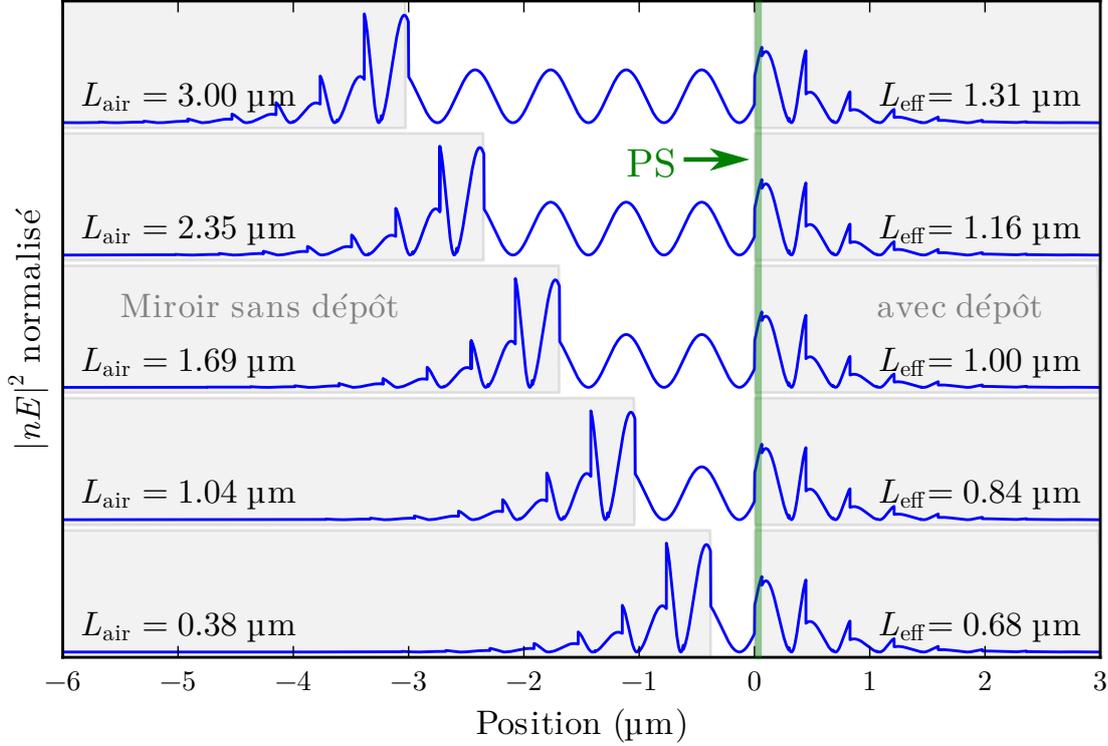


FIGURE 3.41 – Calcul numérique de la densité d'énergie normalisée en fonction de la position par rapport à la surface du miroir recouvert de PS. p est compris entre 4 et 8 pour les modes présentés et une longueur d'onde $\lambda = 1310$ nm. Pour plus de lisibilité, l'ordonnée des modes est décalée vers le haut avec p croissant. Les zones d'indice optique supérieur à 1 ont été grisées. Les longueurs L_{air} de résonances correspondent à celles de la simulation figure 3.39.

Pour résumer, trois longueurs interviennent dans le calcul de V_{eff} :

- La profondeur de pénétration dans les miroirs n'intervient pas sur la stabilité de la cavité. Ainsi, l'écart entre les deux miroirs L_{air} , purement géométrique, apparaît dans le calcul de $G = 1 - \frac{L_{\text{air}}}{\mathcal{R}}$. Cet écart sépare le fond du micro-miroir de la surface du dépôt de PS sur le miroir plan. Il est minimal lorsqu'il est égal à la profondeur de la dépression concave : $L_{\text{air}} = L_g$.
- La longueur définie à partir des résonances de la cavité L_{FSR} rend compte du chemin optique perçu par le mode de cavité. Or, la longueur de Rayleigh intervient dans la phase du mode. Elle est calculée à partir de L_{FSR} et vaut $z_R = \sqrt{L_{\text{FSR}} \mathcal{R} G}$.
- La longueur L_{eff} rend compte de la répartition énergétique du mode de cavité. En supposant le mode cylindrique (c'est-à-dire $L_{\text{ISL}} < z_R$), $V_{\text{eff}} \approx \pi \left(\frac{w_0}{\sqrt{2}}\right)^2 L_{\text{eff}}$.

Comme $w_0^2 = \frac{\lambda}{\pi} z_R$, le volume effectif s'écrit :

$$V_{\text{eff}} \approx \frac{\lambda}{2} L_{\text{eff}} \sqrt{L_{\text{FSR}} (\mathcal{R} - L_{\text{air}})} \quad (3.71)$$

Ce volume est minimal lorsque le micro-miroir et le miroir plan sont au contact ($L_{\text{air}} = L_g$) et, pour $\lambda = 1310$ nm, :

$$V_{\text{eff, min}} \approx \frac{\lambda}{2} \left(\overbrace{0, 24L_g + 0, 59}^{L_{\text{eff}}} \right) \left(\overbrace{L_g + 2, 2}^{L_{\text{ISL}}} \right)^{1/2} \sqrt{\mathcal{R} - L_g} \quad (3.72)$$

La différence qualitative de l'évolution du volume $V_{\text{eff, min}}$ avec et sans pénétration dans les miroirs est tracée à la figure 3.42 en fonction des paramètres géométriques de la dépression concave \mathcal{R} et L_g . Pour rappel de la formule 3.63, $L_{\text{eff}} = L_g/2$ et $L_{\text{FSR}} = L_g$ sans pénétration.

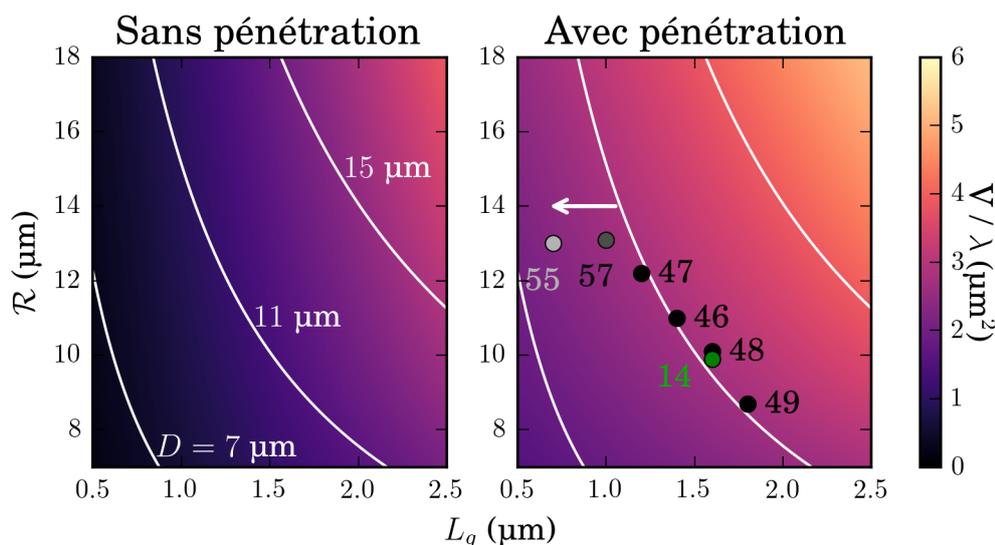


FIGURE 3.42 – Calcul numérique de l'évolution du volume de mode effectif minimal en fonction du rayon de courbure \mathcal{R} de la dépression concave et de sa profondeur L_g . Les courbes blanches manifestent le lien entre \mathcal{R} et L_g à travers le diamètre D du micro-miroir (relation 3.65, $L_g \approx \frac{D^2}{8\mathcal{R}}$). Les données expérimentales de quelques fibres ont été ajoutées en guise d'illustration. Les fibres 14 (mentionnée dans la partie C.2.3), et de 47 à 49 suivent la relation 3.65 pour un diamètre de 11 μm . Les fibres 57 et 55 ont subi un abaissement de la plateforme lors de l'usinage détaillé dans la partie 3.2.2.1, cela revient à diminuer L_g en gardant \mathcal{R} constant (flèche blanche).

Sans prise en compte de la pénétration du champ dans les miroir, $V_{\text{eff, min}}$ est proportionnel à $L_g^{3/2}$ et $\mathcal{R}^{1/2}$: le volume de mode minimal est globalement déterminé par L_g . Ce n'est plus le cas dans le modèle détaillé dans la relation 3.72. D'après la figure 3.42, L_g et \mathcal{R} ont une importance comparable dans l'évolution de $V_{\text{eff, min}}$. Diminuer $V_{\text{eff, min}}$ revient donc à diminuer le diamètre D . Toutefois, d'après la discussion de la

partie 3.2.2.1, D varie peu et est fixé par le dispositif d'ablation laser. Un moyen d'outrepasser cette limite est d'abaisser la plateforme entourant la dépression concave par une étape d'usinage supplémentaire comme pour les fibres 55 et 57 figure 3.42.

Enfin, la cavité doit être à résonance avec l'émetteur ce qui fixe la longueur L_{FSR} pour un mode donné. L_{FSR} est minorée par $L_g + 2,2 \mu\text{m}$ ce qui implique une longueur d'onde minimale de résonance $\lambda_{\text{min}} = \frac{2}{p} (L_g + 2,2 \mu\text{m})$. Un bilan des micro-miroirs fabriqués est présenté figure 3.43 : les volumes de mode minimaux des cavités y sont tracés en fonction de la longueur d'onde minimale atteinte dans la bande de réflexion. Ce graphique est tracé en supposant que les évolutions de L_{FSR} et L_{eff} avec L_g sont indépendantes de la longueur d'onde de travail. Les volumes de modes pour les longueurs d'onde accessibles pour différents modes ont été tracés pour deux micro-miroirs particuliers (n°14/84 et n°55/84).

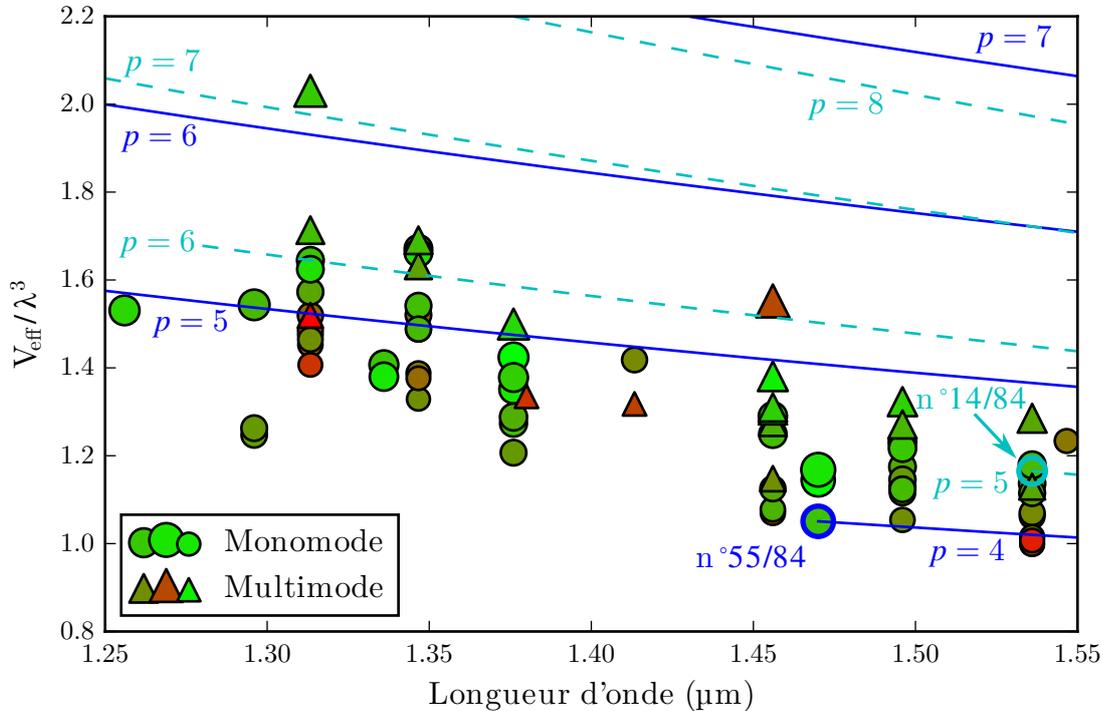


FIGURE 3.43 – Le volume de mode minimal de la relation 3.72 tracé pour chaque fibre dans la bande de réflexion des miroirs : $\lambda_{\text{min}} = \frac{2}{p_{\text{min}}} (L_g + 2,2 \mu\text{m})$ avec p_{min} le mode minimal pour que λ_{min} soit entre 1250 nm et 1550 nm. Les cercles désignent les fibres monomodes et les triangles les multimodes. La surface occupée par chaque cercle ou triangle est proportionnelle au rayon de courbure du micro-miroir. Plus la couleur tend vers le vert plus le micro-miroir est symétrique, plus son excentricité est faible (les excentricités s'étalent de 0,15 à 0,52). Les lignes bleues et les pointillés cyan donnent les volumes des modes pour les longueurs d'onde de résonance accessibles à deux micro-miroirs particuliers : le n°14/84 (cyan) et le n°55/84 (bleu).

Le micro-miroir n°55/84 a été sélectionné car il est peu elliptique et il atteint

un volume de mode très faible. Sauf mention contraire, les résultats des expériences de CQED ont été obtenus en utilisant ce micro-miroir. Figure 3.43 ce volume est estimé à $2,67 \mu\text{m}^3$ pour le mode 5 à la longueur d'onde 1170 nm qui est en dehors de la bande de réflexion. Lorsque le micro-miroir est au contact du miroir plan, la cavité est résonante à 1460 nm pour le mode 4. Elle correspond à un volume effectif de $3,33 \mu\text{m}^3$.

Pour vérifier cette valeur, $V_{\text{eff}, \text{min}}$ a été calculé à partir de la simulation en éléments finis présentée figure 3.40 pour le mode 4 résonant à 1457 nm, il vaut $2,72 \mu\text{m}^3$. La répartition de la densité d'énergie $|nE|^2$ utilisée dans ce calcul est donnée figure 3.44. La formule 3.72 est valable à 20% près. La précision de l'estimation de V_{eff} reste limitée car le champ, très confiné, s'éloigne de l'approximation gaussienne¹⁶.

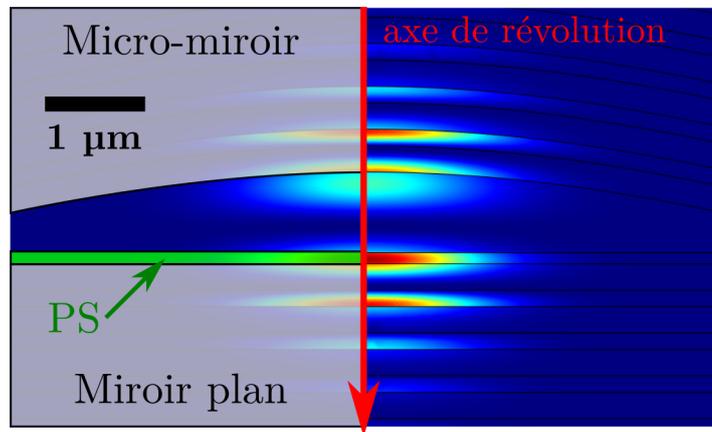


FIGURE 3.44 – Simulation de la densité d'énergie du mode $p = 4$ résonant à 1460 nm avec le profil du micro-miroir n°55/84 issu des données figure 3.35. Elle a été calculée sur COMSOL Multiphysics en considérant une symétrie axiale : les ordonnées correspondent à l'axe optique (z) et les abscisses à l'écart à cet axe (r).

Les volumes des premiers modes accessibles à 1310 nm avec le micro-miroir n°55/84 sont estimés en unité de λ^3 ($\sim 2,2 \mu\text{m}^3$) dans le tableau suivant :

TABLE 3.4 – Estimation du volume de mode pour le micro-miroir n°55/84.

p	5	6	7	8	9	10
$L_{\text{air}} (\mu\text{m})$	1,08	1,73	2,39	3,04	3,70	4,37
$V_{\text{eff}} (\lambda^3)$	1,5	1,9	2,4	2,8	3,2	3,6

16. Cette explication concorde avec l'évaluation entre 6,1 et 8,6 μm du rayon de courbure du micro-miroir n°55/84 à partir de la transmission de la cavité figure 3.28. Le rayon de courbure est sous-estimé, cela provient d'un confinement latéral du champ plus important que dans l'approximation gaussienne.

Cette partie permet de conclure que les micro-cavités fabriquées atteignent des volumes de modes assez faibles, compris entre 1 et $1,8\lambda^3$ (soit entre 3,8 et $6,8(\lambda/n_{\text{PS}})^3$ en prenant en compte l'indice de la matrice contenant les CNT) pour les plus petits modes accessibles. Cependant, comme le facteur de Purcell est proportionnel à $Q\frac{\lambda^3}{V} = p\mathcal{F}\frac{\lambda^3}{V}$, il faut aussi vérifier que leur finesse est appropriée pour qu'elles puissent remplir leur rôle dans les expériences de CQED.

3.2.3 Finesse réelle

Le micro-miroir doit non seulement être adapté à de faibles volumes de modes, mais sa réflectivité doit être suffisante pour atteindre la finesse attendue. En effet, les coefficients de transmission des miroirs étant de l'ordre de 500 ppm, de très faibles pertes suffisent pour modifier significativement la transmission de la cavité. De plus, la finesse varie suivant l'homogénéité du dépôt sur le miroir plan et doit donc être estimée à chaque fois que l'échantillon est déplacé. Les techniques de mesure de la finesse sont présentées partie 3.2.3.1. Les pertes limitant cette finesse se séparent en deux catégories : les pertes sèches (absorption, diffusion et diffraction) et les pertes utiles (transmission). Les pertes sèches sont abordées partie 3.2.3.2 et la collection est estimée dans l'annexe C.3.

3.2.3.1 Mesure de la finesse

D'après l'équation 3.46, la finesse s'exprime en fonction du FSR et de la largeur à mi-hauteur (FWHM) du pic de transmission :

$$\mathcal{F} \approx \frac{\text{FSR}_\lambda}{\Delta\lambda_p} \quad (3.73)$$

Dans un cas idéal, l'acquisition d'un spectre de transmission en lumière blanche suffirait pour mesurer la finesse. Cependant, la cavité optique subit des vibrations assez importantes qui élargissent artificiellement les pics de transmission. Ces vibrations font l'objet du chapitre 4.

Pour mesurer la finesse en s'affranchissant des perturbations, trois techniques ont été mises en place pour trois domaines d'application différents. Elles sont résumées à la figure 3.45 et reposent toutes sur un principe commun : la cavité est excitée dans la bande de réflexion par une source laser et l'intensité transmise est collectée via une photodiode rapide¹⁷ pendant que la longueur de cavité est balayée. Il faut s'assurer que la largeur spectrale des sources utilisées est suffisamment faible pour ne pas élargir les pics de transmission. Parmi les sources laser utilisées, celle qui possède la plus large émission spectrale est une diode laser $\lambda_{\text{DL}} = 1310 \text{ nm}$. Néanmoins, sa résolution est suffisante pour estimer la largeur des pics de transmission.

17. Diode laser LP1310-SAD2, lasers accordables Ti :Sa SolsTiS M Squared ou T100S-HP-CL Yenista Optics et photodiode PDA10CS-EC Thorlabs

D'après les spécifications, la largeur spectrale typique de la diode laser est de 0,1 nm à -20 dB c'est-à-dire 0,01 nm à mi-hauteur. D'après la figure 3.37, la finesse de la cavité devrait valoir environ 6000 à 1310 nm. Or, d'après la formule 3.44, la largeur du laser ne deviendrait comparable à celle du pic de transmission que pour $p > 20$ ($\text{FSR}_\lambda = 69$ nm).

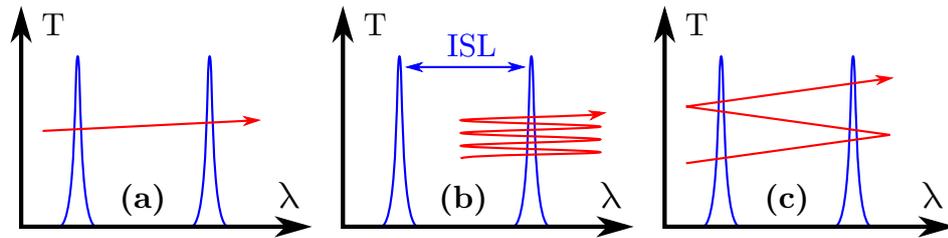


FIGURE 3.45 – (a) La longueur de cavité est balayée par une rampe rapide de grande amplitude de façon à sonder à la fois un FSR et la largeur des pics de transmission (détails partie C.2.1). (b) Une modulation sinusoïdale rapide est imposée à la longueur de cavité autour d'une résonance pour sonder précisément la largeur d'un pic de transmission. L'amplitude de modulation en longueur d'onde et le FSR proviennent d'une étude spectroscopique (détails partie C.2.2). (c) La longueur de cavité est modulée lentement par un signal triangulaire de grande amplitude de façon à sonder à la fois le FSR et la largeur des pic de transmission (détails partie C.2.3).

Pour mesurer la finesse indépendamment des vibrations, il faut soit faire une mesure d'une durée courte devant le temps caractéristique des vibrations (méthodes C.2.1 et C.2.2) soit les prendre en compte d'un point de vue statistique (méthode C.2.3).

La finesse de la cavité formée par le micro-miroir n°55/84 et un miroir plan avec un dépôt de 100 nm de PS est estimée par la méthode C.2.2 à 769 ± 12 nm. Elle est quasiment un ordre de grandeur plus basse que la finesse calculée figure 3.37. Pour répondre à ce problème, un test systématique des micro-miroirs a été mis en place pour mesurer la finesse réelle avant une utilisation dans le dispositif d'émetteur en cavité. Cette mesure en amont utilise la méthode détaillée dans l'annexe C.2.3. En outre, des explications à cette chute de finesse sont proposées dans la partie 3.2.3.2 consacrée aux pertes sèches.

L'évaluation en amont de la qualité du micro-miroir apporte une réelle plus-value : le micro-miroir n°55/84 a désormais été remplacé par le n°14/84 qui présente une finesse d'environ 1800. Toutefois, toutes les expériences de CQED présentées dans cette thèse proviennent du miroir n°55/84.

Bilan Les profils de transmission mesurés au spectromètre pour une excitation en lampe blanche de trois micro-cavités sont présentés à la figure 3.46. Ils ont été tracés en fonction de la longueur d'onde exprimée en FSR pour que la FWHM reflète la finesse et non le facteur de qualité. Le micro-miroir fabriqué par B. Besga a une bande

de réflexion entre 840 à 980 nm et n'a pas été utilisé pour des expériences d'émetteurs en cavité. Cependant, son pic de transmission donne une référence expérimentale en finesse.

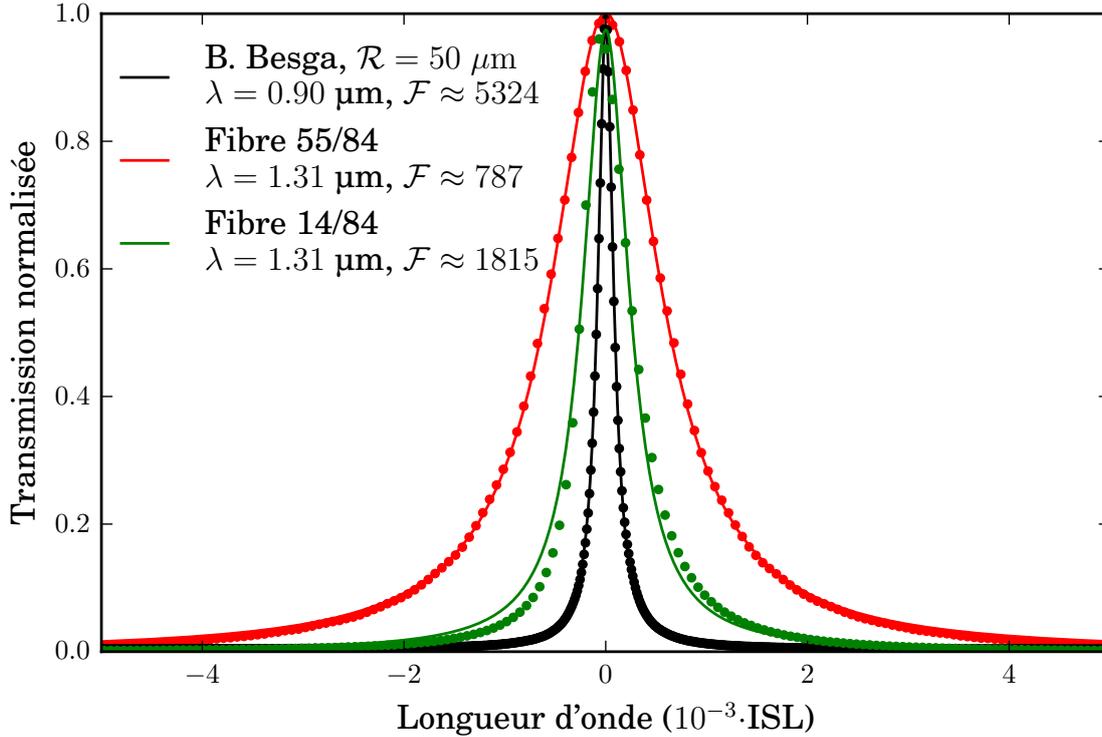


FIGURE 3.46 – Transmission normalisée des micro-cavités fibrées en fonction de la longueur d'onde exprimée en FSR (la FWHM vaut $1/\mathcal{F}$). Les points proviennent d'un moyennage de plus de 200 pics de transmission acquis par la méthode présentée à la partie C.2.2. Les lignes sont des ajustements lorentziens auxquels correspondent les finesesses données en légende. Le micro-miroir fabriqué par B. Besga fait face à un miroir nu tandis que les micro-miroir n°14/84 et n°55/84 font face à un dépôt de 100 nm de PS.

Le facteur de qualité le plus bas atteint avec le micro-miroir n°55/84 vaut $Q_{\text{cav}} = p\mathcal{F} \approx 3800$. Il est comparable au facteur de qualité d'un émetteur de $250 \mu\text{eV}$ de FWHM pour une émission centrée à $0,95 \text{ eV}$. Le tableau suivant présente des ordres de grandeurs des facteurs de qualités Q_{eff} et des facteurs de Purcell F_p^* effectifs associés aux modes 5 à 9 avec le micro-miroir n°55/84 en présence d'un émetteur de $340 \mu\text{eV}$ de FWHM :

TABLE 3.5 – Estimation du facteur de qualité effectif Q_{eff} et du facteur de Purcell généralisé F_p^* accessibles pour le micro-miroir n°55/84 et un émetteur d'un facteur de qualité $Q_{\text{ém}}$ de 2800.

p	5	6	7	8	9	10
Q_{eff}	1610	1730	1830	1910	1980	2040
F_p^*	20	17	15	13	11	9

Le volume de mode est calculé avec le modèle 3.71 et, pour rappel de la partie 3.1.2.2, $Q_{\text{eff}}^{-1} = Q_{\text{cav}}^{-1} + Q_{\text{ém}}^{-1}$. Dans le cadre de cette estimation, l'émetteur est considéré entouré d'une matrice de PS d'indice 1,6.

Plus généralement, les finesses des micro-cavités testées dans cette thèse sont au mieux un facteur 3 plus basses qu'espéré. Quelques sources possibles de cette chute de finesse sont détaillées dans la partie suivante.

3.2.3.2 Pertes sèches

La différence entre les finesses des micro-cavités fabriquées ($\mathcal{F} < 2000$) et la finesse espérée pour la structure diélectrique choisie ($\mathcal{F} > 5000$) est significative. Cette partie a pour but de recenser et d'évaluer les mécanismes pouvant causer cette différence.

La finesse d'une cavité optique peut s'exprimer en fonction des pertes P , c'est-à-dire en fonction des mécanismes diminuant l'intensité lors d'un aller-retour entre les miroirs. Elle s'exprime de la manière suivante :

$$\mathcal{F} = \frac{2\pi}{P_{\text{totales}}} = \frac{2\pi}{\underbrace{T_{\text{micro-miroir}} + T_{\text{miroir-plan}}}_{P_{\text{utiles}}} + P_{\text{sèches}}} \quad (3.74)$$

Une partie de ces pertes résulte de la transmission des miroirs diélectriques et peut éventuellement être collectée. Elles sont nécessaires à la mesure et doivent être distinguées des pertes sèches dues aux imperfections du système. Ces dernières peuvent provenir de la forme du micro-miroir ou de l'absorption/diffusion des miroirs ou du dépôt formant l'échantillon.

Taille finie du micro-miroir D'après la partie 3.2.1.1, la cavité n'est stable que pour $L_{\text{air}} < \mathcal{R}$. Si cette condition n'est pas vérifiée, la focalisation du miroir concave ne compense pas la divergence du faisceau sur un aller-retour. Cela engendre une chute brutale de la finesse due à des pertes latérales. En pratique la limite de stabilité est plus contraignante et dépend de l'ellipticité du micro-miroir [238] et de leur taille [36]. Pour les micro-miroirs, la finesse est principalement limitée par leur diamètre D : le mode de largeur w est tronqué à chaque aller-retour à une largeur $D/2$.

Pour une longueur d'onde de 1310 nm et le micro-miroir n°55/84 (voir la figure 3.35), la largeur w du mode gaussien déborde du micro-miroir pour $L_{\text{air}} \approx 12,3 \mu\text{m}$. Elle couvre 50% du rayon du micro-miroir pour $L_{\text{air}} \approx 6,7 \mu\text{m}$.

Lors d'une réflexion sur un micro-miroir de taille finie, les pertes sont approximativement données par [36] :

$$P_{\text{débordement}} \approx \exp\left(-2\left(\frac{D}{2w(L)}\right)^2\right) \quad (3.75)$$

La finesse prenant en compte ces pertes est tracée à la figure 3.47 en fonction de la longueur de cavité L_{air} .

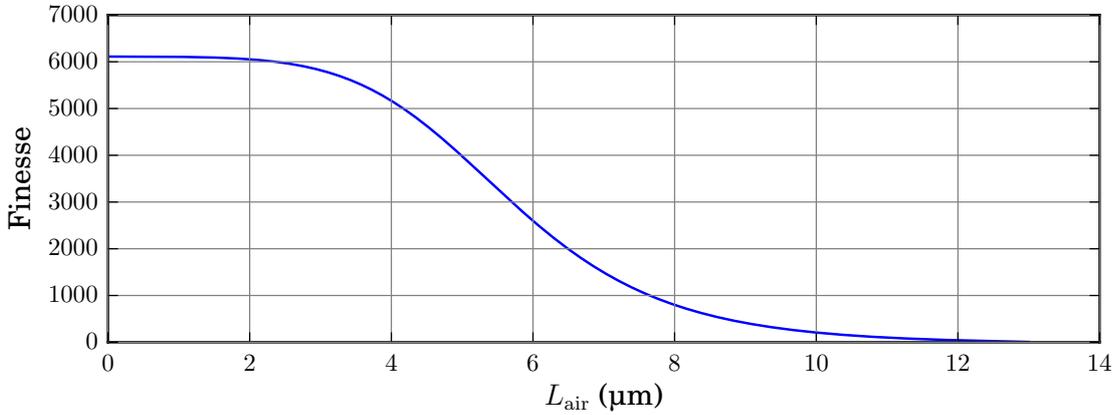


FIGURE 3.47 – Finesse issue de la relation 3.74 prenant en compte les pertes d'intensité débordant du micro-miroir définie dans l'équation 3.75 en fonction de la longueur de cavité géométrique L_{air} .

Ce type de perte ne devient significatif qu'à partir d'une longueur de cavité suffisamment grande. En prenant en compte la longueur de pénétration dans les miroirs, la finesse ne chute que de 10% au mode $p = 9$. Cet effet n'est donc pas crucial pour les expériences de CQED pour lesquelles la longueur de cavité est minimisée (voir la partie 3.2.2). Donc, la chute de finesse provient plutôt de pertes par absorption ou diffusion.

Pertes dues à l'échantillon L'entreprise chargée du dépôt du miroir diélectrique estime les pertes due à la pénétration du champ dans un miroir inférieures à 100 ppm. Ces spécifications sont confirmées par une mesure de la transmission. L'émission d'une diode laser à 1310 nm est envoyée sur un miroir plan et son intensité est mesurée avant et après le miroir. Cela donne une transmission du miroir nu de $T_{\text{nu,exp}} = 586 \pm 18 \text{ ppm}$ pour une valeur théorique $T_{\text{nu,th}} = 615 \text{ ppm}$ calculée dans la partie 3.2.2.2. La mesure en transmission donne une majoration des pertes. Toutefois

les mesures en réflexion sont plus délicates à réaliser car la mesure est peu contrastée (le coefficient de réflexion est proche de 1).

Par contre, une différence de transmission est observée entre un miroir nu et un miroir recouvert de 100 nm de PS protégeant des CNT. En présence de l'échantillon la transmission vaut $T_{\text{éch,exp}} = 278 \pm 2$ ppm pour une valeur théorique $T_{\text{éch,th}} = 412$ ppm. Soit la couche de PS est plus épaisse que prévu et diminue la transmission, soit une partie de l'intensité est absorbée/diffusée. Pour différencier ces deux cas, une mesure du coefficient de réflexion a été réalisée.

L'évaluation de la réflexion des miroirs est plus délicate que celle de la transmission. En effet, elle demande une procédure plus longue d'alignement ce qui engendre des dérives temporelles du signal. Pour plus de reproductibilité, seule la différence de réflexion entre un miroir avec dépôt et un miroir nu a été mesurée¹⁸. Les pertes dues à l'échantillon s'écrivent :

$$P_{\text{éch}} = T_{\text{nu}} + R_{\text{nu}} - (T_{\text{éch}} - R_{\text{éch}}) \quad (3.76)$$

La figure 3.48 présente les données issues de 12 mesures de l'intensité réfléchie en alternant les miroirs. La dérive temporelle a été prise en compte et modélisée par une droite. Le miroir avec dépôt est moins réfléchissant que le miroir sans dépôt de $R_{\text{nu}} - R_{\text{éch}} \approx 720 \pm 270$ ppm. Ainsi, $P_{\text{éch}} = 1028 \pm 271$ ppm. Cela mène à une finesse $\mathcal{F} = \frac{2\pi}{T_{\text{nu}} + T_{\text{éch}} + P_{\text{éch}}} \approx 3320$. L'absorption/diffusion du dépôt diminue la finesse d'un facteur 2.

18. Une mesure absolue de la réflexion demande de déplacer à la fois le miroir et la photodiode alors que pour une mesure différentielle il suffit de changer le miroir.

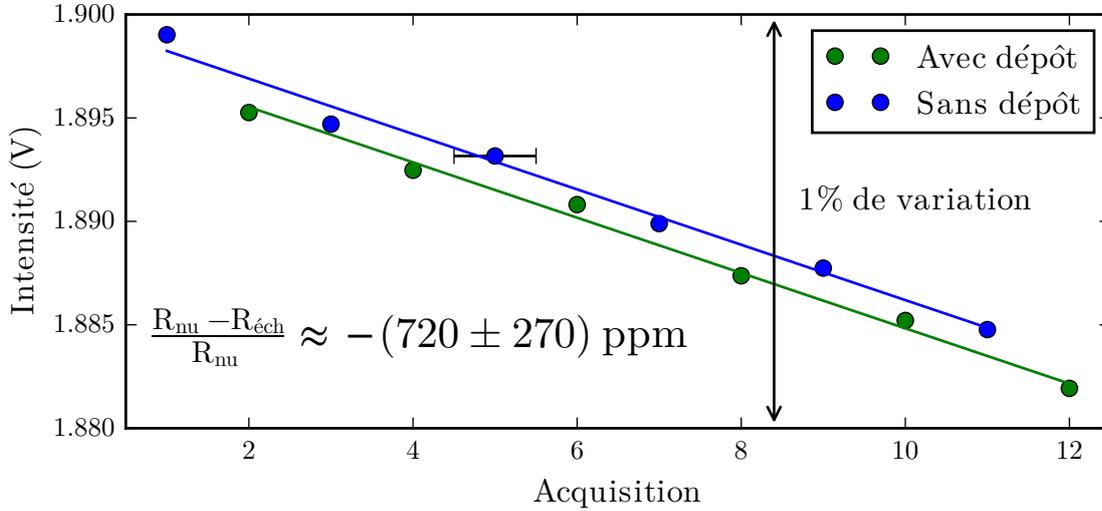


FIGURE 3.48 – Intensité réfléchiée par deux miroirs de Bragg dont la structure est décrite dans la partie 3.2.2.2. Un miroir est nu tandis que l’autre supporte un échantillon de CNT dopés recouverts de 100 nm de PS. L’axe des abscisses décrit l’ordre avec lequel ont été effectuées les mesures. La procédure d’alignement précédant chaque acquisition étant constante, l’axe des abscisses peut être assimilé à un temps. Pour estimer la différence de réflectivité entre les miroirs, la dérive temporelle de l’intensité est supposée linéaire et l’incertitude sur les abscisses est choisie égale à la durée moyenne d’une mesure.

L’échantillon considéré a été réalisé à Los Alamos en mettant l’accent sur la qualité d’émission des CNT sans forcément se préoccuper de la pureté de la couche protectrice de PS et de sa rugosité. Or, des pertes de l’ordre de 20 ppm ont déjà été atteintes dans notre équipe pour des CNT déposés en matrices de PS [40]. Pour tenter de réduire les pertes, les prochains dépôts se feront donc sur place à partir de CNT en solution provenant de Los Alamos ou de Heidelberg.

Les pertes dues à l’échantillon ne permettent pas d’expliquer entièrement les finesses mesurées. De plus, ces pertes sont moyennées sur la largeur du faisceau laser (environ 3 mm) et peuvent donc varier significativement sur l’échantillon en fonction de la surface de quelques μm^2 sondée par la micro-cavité. Toutefois, même dans le cas où l’absorption du dépôt serait négligeable, une rugosité des micro-miroirs peut engendrer des pertes par diffusion.

Diffusion du micro-miroir Les pertes par diffusion sur les miroirs sont directement liées à leur rugosité par la formule suivante [239, 240] :

$$P_{\text{rugosité}} \simeq \left(\frac{4\pi\sigma}{\lambda} \right)^2 \quad (3.77)$$

où σ est la rugosité quadratique moyenne (pour des variations inférieures à la

longueur d'onde de travail). Dans de bonnes conditions, la rugosité après ablation laser est de l'ordre de 0,2 nm [36], ce qui rend ces pertes négligeables : $P_{\text{rugosité}} < 5$ ppm. Cependant, un défaut de fabrication peut rapidement engendrer des rugosités de plusieurs dizaines de nanomètres (voir l'annexe C.1.2).

Une mesure AFM de la rugosité du micro-miroir n°8/84 est donnée à la figure 3.49. La rugosité est d'environ 4 nm dans la dépression concave, alors qu'elle n'est que de 0,6 nm sur la plateforme qui l'entoure. Cette répartition semble privilégier une légère redéposition de la silice sublimée (invisible à l'interféromètre de Mirau). Bien que la fabrication des micro-miroirs fibrés implique une puissance laser 6 fois inférieure à celle utilisée pour l'usinage (figure C.3), les conditions de bord au niveau de l'extrémité de la fibre pourraient causer un effet similaire¹⁹. Ce sont ces mêmes conditions de bords qui rendent délicate la fabrication d'une dépression concave après avoir chanfreiné la fibre. En effet, l'irrégularité des bords de la plateforme laissée intacte après le chanfrein ne permet pas une répartition isotrope de la chaleur. Ainsi, il est difficile de contrôler le profil d'une dépression concave créée après avoir chanfreiné.

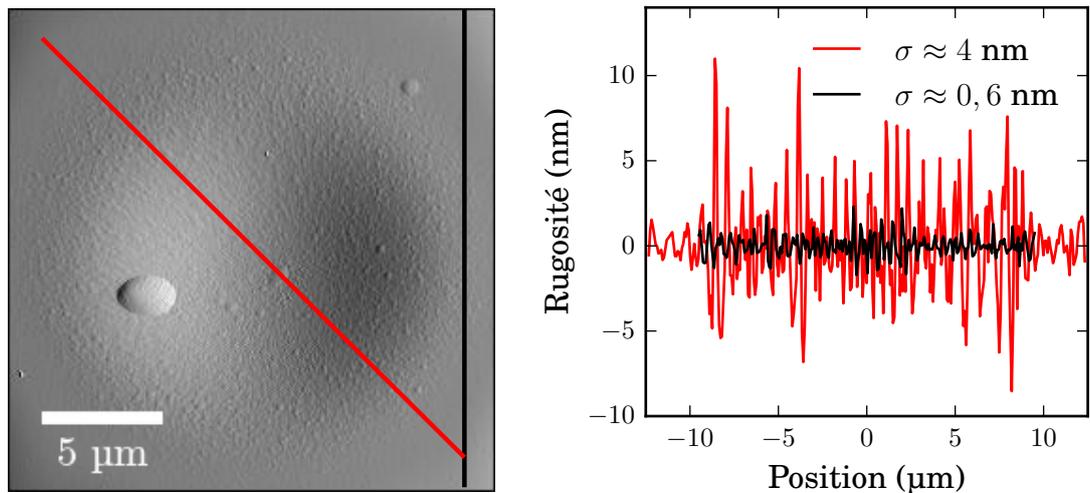


FIGURE 3.49 – **À gauche** : Image de la dépression concave n°8/84 en AFM (amplitude du signal d'erreur en mode contact intermittent). Les lignes noire et rouge délimitent des profils de rugosité. **À droite** : Profils de rugosité définis précédemment. Ils sont obtenus à partir d'une mesure de hauteur dont les fréquences spatiales inférieures au micromètre ont été filtrées.

L'évolution de la finesse de la cavité en fonction de la rugosité d'un miroir est donnée à la figure 3.50. Une rugosité de 4 nm comme celle du micro-miroir n°8/84 permettrait d'expliquer la finesse de 1800 obtenue avec le micro-miroir n°14/84. Par

¹⁹. La chaleur apportée par un impact laser s'évacue plus facilement sur une lame de verre qu'à l'extrémité d'une fibre optique. De ce fait, une plus faible puissance laser est nécessaire pour sublimer la silice à l'extrémité d'une fibre optique.

contre, la finesse de 750 ne s'explique qu'avec un défaut d'usinage plus marqué ou une impureté accidentelle dans la dépression concave (cf. figure 3.49).

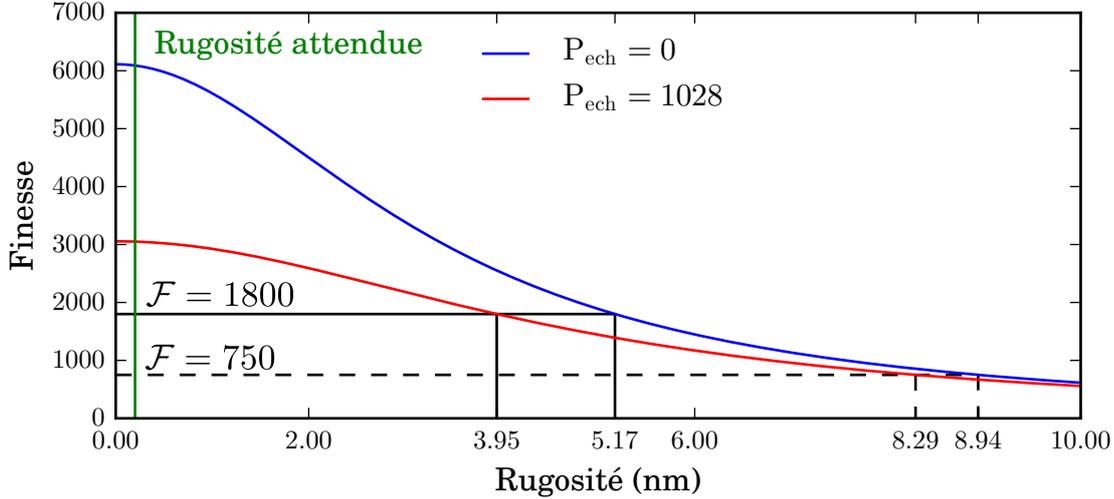


FIGURE 3.50 – Finesse issue de la relation 3.74 prenant en compte les pertes par diffusion équation 3.77 en fonction de la rugosité du micro-miroir. La courbe bleue ne considère que les pertes diffusives tandis que la courbe rouge inclut les pertes par absorption/diffusion du dépôt de PS abordées dans la partie 3.2.3.2.

À l'avenir, une étude plus systématique par AFM sera menée pour améliorer le protocole d'ablation laser et conserver une rugosité proche de 0,2 nm.

Conclusion

Les micro-cavités utilisées dans cette thèse sont formées d'un miroir plan sur lequel l'échantillon est déposé et d'un micro-miroir fibré. Les modes de cavité sont relativement bien décrits par l'optique gaussienne et leurs volumes croissent avec la longueur de cavité et le rayon de courbure du micro-miroir. Du fait de la longueur de pénétration du champ dans les couches diélectriques donnant leur réflectivité aux miroirs, ce volume de mode s'écarte du volume géométrique délimité par la micro-cavité et atteint quelques λ^3 .

Trois méthodes ont été mises en place pour mesurer la finesse réelle des micro-cavités indépendamment des vibrations du système. Bien qu'elle soit dégradée par une rugosité anormale des micro-miroirs, elle reste acceptable pour des émetteurs dont la FWHM est supérieure à 250 μeV . L'efficacité de collection de l'intensité extraite de la cavité atteint 30 à 40% répartis à environ $1/3$ du côté du micro-miroir fibré et $2/3$ du côté du miroir plan.

Le micro-miroir principalement utilisé est le n°55/84. Sa profondeur est de 0,7 μm et son rayon de courbure de 13 μm , ce qui permet de parvenir à un volume de mode

CHAPITRE 3. ÉMETTEUR UNIQUE COUPLÉ À UNE CAVITÉ OPTIQUE

entre $1,5$ et $3\lambda^3$ (pour $\lambda = 1310$ nm). Le plus petit mode accessible a une largeur de $1,6 \mu\text{m}$ et une longueur de Rayleigh de $6 \mu\text{m}$ ce qui correspond à une divergence de 15° . La finesse de la cavité est d'environ 770 . Ainsi, des facteurs de Purcell effectifs entre 10 et 30 sont attendus. Cependant, les effets de CQED sont brouillés par les vibrations relatives du micro-miroir par rapport au miroir plan. Le chapitre suivant est consacré à la démarche suivie pour minimiser ces vibrations.

4

STABILISATION DE LA MICRO-CAVITÉ

Sommaire

4.1	Influence des vibrations	133
4.1.1	Description du dispositif	133
4.1.1.1	Sources de vibrations	133
4.1.1.2	Système mécanique	135
4.1.2	Estimation des vibrations	139
4.1.2.1	Principe	139
4.1.2.2	Objectifs de stabilisation	140
4.2	Stabilisation passive	142
4.2.1	Atténuation des vibrations	142
4.2.1.1	Frottements solides	142
4.2.1.2	Raideur différentielle	145
4.2.2	Bilan à températures ambiante et cryogénique	146
4.2.2.1	Comportement à température ambiante	146
4.2.2.2	Transmission de la cavité à basse température	148
4.3	Stabilisation active	149
4.3.1	Boucle de rétroaction	149
4.3.1.1	Réponse en boucle ouverte et en boucle fermée	149
4.3.1.2	Sources d'instabilité et gain intégral	151
4.3.2	Fonction de transfert	152
4.3.2.1	Réponse des appareils fixes	152
4.3.2.2	Signal d'erreur	156
4.3.3	Mise en œuvre expérimentale	162
4.3.3.1	Effet de la rétroaction	162
4.3.3.2	Critique du signal d'erreur	165
4.3.3.3	Stabilisations envisagées	169

La cavité choisie pour les expériences de CQED est une micro-cavité fibrée. Cette cavité Fabry-Pérot ouverte est beaucoup plus polyvalente qu'une cavité rigide car elle permet d'obtenir l'accord spatial et spectral entre le mode de cavité et l'émetteur. Cependant, la longueur de cavité varie aussi de façon non intentionnelle à cause des vibrations. En effet, ces différents degrés de liberté la rendent extrêmement sensible à la moindre excitation mécanique. Ce phénomène brouille les signaux recherchés et doit être minimisé. Ce chapitre a pour but de présenter les moyens mis en place pour réduire ou compenser ces fluctuations.

Une première partie précise ce qui peut vibrer dans le système et à quel point cela influe sur les mesures. Sa stabilisation passive est abordée dans une deuxième partie. Les méthodes existant pour rétroagir sur la longueur de cavité afin de la garder constante et leur implémentation font l'objet d'une troisième et quatrième partie. En outre, la dernière partie détaille les problèmes ayant empêché l'aboutissement de la stabilisation active dans cette thèse et comment les contourner.

4.1 Influence des vibrations sur le système

Le système supportant la micro-cavité fibrée a été initialement conçu pour faciliter les accès optiques et rester mobile sur une large plage de distances à basse température. Satisfaire ces critères a tendance à rendre l'ensemble moins rigide et donc de favoriser les vibrations. Une première sous-partie s'attelle à décrire l'agencement du dispositif. Le protocole expérimental utilisé pour estimer les vibrations est expliqué dans une seconde sous-partie. Cette mesure d'amplitude permet de fixer un objectif de stabilisation et d'évaluer l'efficacité des méthodes développées dans les parties suivantes.

4.1.1 Description du dispositif

4.1.1.1 Sources de vibrations

La micro-cavité fibrée est contenue dans l'enceinte d'un cryostat descendant jusqu'à 12 K, lui-même fixé sur une table optique isolée du sol par des pneumatiques. Il est difficile de découpler toutes les sources de vibrations susceptibles de faire fluctuer la longueur de cavité. Pour identifier les plus critiques, les vibrations de la table optique ont été sondées en différents points grâce à une céramique piézoélectrique PZT. Le piézoélectrique est plaqué sur la table par une masse de plusieurs kilogrammes et la tension mesurée parallèlement à la contrainte. Le signal obtenu permet d'estimer qualitativement si la table est soumise à une excitation. Selon le constructeur, les ressorts pneumatiques PLM-12 soutenant la table optique possèdent une fréquence de coupure comprise entre 3 et 10 Hz. Néanmoins, la table présente des résonances comprise entre 100 et 500 Hz selon la charge (d'après le constructeur) et reste faiblement couplée au sol via notamment des fils électriques et des fibres optiques

et surtout des tubes de circuit de refroidissement et de pompage. Bien que des précautions aient été prises pour les amortir en amont, une partie de ces vibrations est transmise à la table optique. Elle provient majoritairement de pompes ou de ventilateurs et sa gamme de fréquences se situe entre 50 et 300 Hz.

Bien que l'enceinte dans laquelle se trouve la micro-cavité soit sous relativement basse pression (1×10^{-5} mBar), elle reste sensible aux fréquences sonores. Pour des raisons pratiques, un coffrage acoustique n'a pas été mis en place mais des panneaux de mousse insonorisante ont été déployés entre la table optique et les appareils les plus bruyants (refroidisseurs et compresseurs).

À température cryogénique, le cryostat est la principale source d'excitations. En effet, il s'agit d'un réfrigérateur à tube pulsé personnalisé Cryostation Montana Instruments qui induit par conséquent des vibrations [241]. Cet effet est particulièrement visible en observant les fluctuations de transmission de la cavité. Pour ce faire, un laser est envoyé dans la cavité en dehors de la bande de réflexion des miroirs (ici à 870 nm) et l'intensité transmise est mesurée à l'aide d'une photodiode. La figure 4.1 donne un aperçu du signal obtenu à températures ambiante et cryogénique. Sur le graphique les fluctuations de transmission sont converties en amplitude de vibrations avec la méthode détaillée dans la partie 4.1.2.1. Les pics d'amplitudes à basse température apparaissent régulièrement à une fréquence de 0,8 Hz (période de 1,25 s). Il s'agit de la fréquence de fonctionnement la plus basse du cryostat.

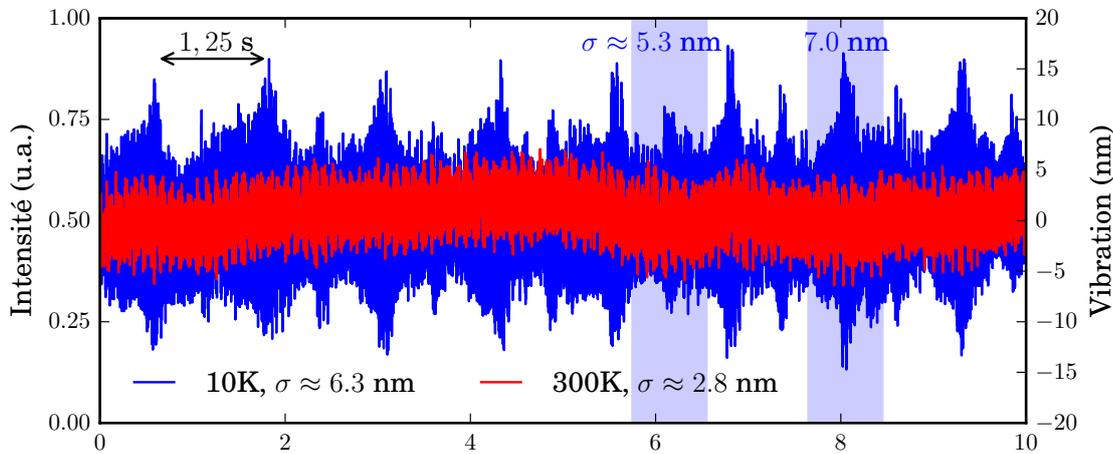


FIGURE 4.1 – Amplitudes typiques de vibrations de la cavité optique à température ambiante (en rouge) et à température cryogénique (en bleu), leurs écart-types sont donnés en légende. L'écart type de l'amplitude de vibrations à basse température est aussi calculé sur 0,8s entre deux maxima de vibrations et sur un maximum (zones en bleu).

Comme on le voit à la figure 4.1, pour un temps d'exposition de 0,8s l'écart-type des vibrations peut varier significativement (5,3 nm entre deux pics et 7,0 nm sur un pic). Partant de ce constat, une première tentative pour diminuer l'impact

des vibrations dans les expériences de CQED a été de synchroniser la caméra du spectromètre (avec un certain délai) avec les pulses du cryostat. L'objectif était d'acquérir le signal uniquement entre les pics principaux de vibrations. Dans les conditions d'utilisation, le temps de lecture de la caméra infrarouge NIRvana:640LN Princeton Instruments a un temps de lecture de 0,43s et un temps de purge du capteur de 0,27s. Ces valeurs sont proches du temps minimal d'acquisition donné par le constructeur ($0,43 + 0,27 = 0,70$ s pour 0,57s dans les spécifications). Ce temps étant du même ordre de grandeur que la période des cycles du cryostat, les acquisitions ont lieu un cycle sur deux. En pratique, la largeur du pic de transmission de la cavité ne diminue pas avec la synchronisation.

En effet, pour bénéficier d'une amplitude moyenne de vibrations plus faible, le temps d'exposition doit être faible devant la période des impulsions. Or, le rapport signal sur bruit du dispositif impose des expositions de l'ordre de 1 s. Cela ne donne que trop peu de marge de manœuvre par rapport au temps de décroissance de l'amplitude des vibrations. De plus, un pic secondaire est présent à la mi-période et provient du retour du piston. La méthode de synchronisation ne sera bénéfique que pour des temps d'acquisition plus faibles (c'est-à-dire pour un signal plus intense) ou si les vibrations sont atténuées plus rapidement entre deux pics de vibrations.

4.1.1.2 Système mécanique

Pour comprendre l'origine des vibrations, il faut avoir à l'esprit l'agencement du support de la micro-cavité fibrée contenu dans l'enceinte du cryostat. Il est décrit à la figure 4.2. La propagation des vibrations de la table optique ou du doigt froid vers la plateforme supportant la fibre usinée et l'échantillon n'est pas divulguée par le constructeur. Cependant, les spécifications indiquent un écart-type des vibrations du doigt froid inférieur à 5 nm. Une niche sur mesure a été ajoutée afin d'accueillir un filtre mécanique faisant l'objet de la partie D.1.1.

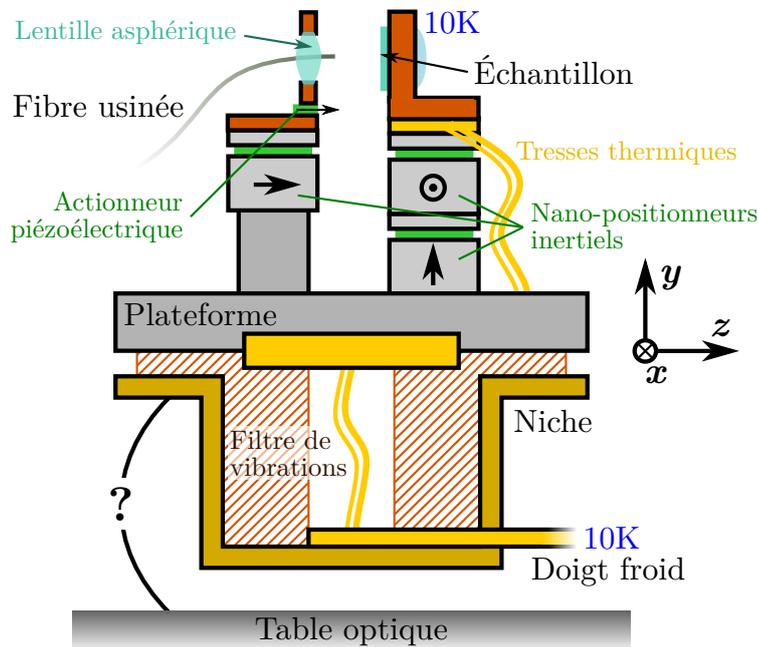


FIGURE 4.2 – Schéma du support de la micro-cavité fibrée formée par la fibre usinée et l'échantillon (voir le chapitre 3). Les excitations mécaniques sont transmises par la table optique et le doigt froid à une niche accueillant un filtre mécanique. Ce dernier supporte la plateforme sur laquelle sont fixés les différents positionneurs ajustant la position de la fibre usinée et de l'échantillon. La fibre usinée est fixée à la lentille asphérique utilisée en micro-photoluminescence (voir le chapitre 5). Dans tout ce chapitre, l'axe (z) désigne l'axe optique de la cavité et (x) et (y) sont les axes transverses parallèles à l'échantillon.

Ce système est avant tout conçu pour permettre une transition simple entre l'observation en micro-photoluminescence d'un émetteur et la collection de son émission en cavité (voir la partie 5.1). Puisque la fibre usinée est fixée à la lentille utilisée en micro-PL (voir le schéma 4.2), le positionneur ajustant à la fois la focale de la lentille et la position de la fibre doit posséder une précision nanométrique et une course totale millimétrique. Les contraintes sont les mêmes pour les positionneurs de l'échantillon : il faut pouvoir balayer une grande surface tout en gardant la possibilité d'ajuster un émetteur avec le mode de cavité au nanomètre près. Cela implique l'utilisation de nano-positionneurs inertiels ANPx51/RES et ANPz51/RES Attocube (utilisant le phénomène de coller-glisser propre aux frottements solides). Ces nano-positionneurs possèdent des résonances à vide particulièrement marquées entre 3 kHz et 5 kHz. Une fois chargés d'une masse de quelques dizaines de grammes, ces résonances chutent entre 0,4 kHz et 0,6 kHz et peuvent être excitées par les vibrations basse fréquence décrites dans la partie précédente. Les spécifications données par le constructeur ne concernent que le comportement à température ambiante.

Un actionneur piézoélectrique P-111.01T PICA PhysikInstrumente d'environ 1 μm de course a été ajouté entre le support de la lentille percée et un nano-positionneur

dans le but de mettre en place une stabilisation active (discutée dans la partie 4.3). Cet actionneur a une résonance à vide nettement plus élevée à 530 kHz. Toutefois, sa petite surface ainsi que les contraintes liées aux accès optiques mettent le support de la fibre usinée en porte-à-faux. Au delà des résonances en vibration, cette configuration implique des difficultés lors de la stabilisation active (voir l'annexe D.2.5).

Pour que la fibre usinée soit placée parallèlement à l'axe optique utilisé en micro-PL, elle est collée dans un trou percé à travers la lentille asphérique (figure 4.2 et partie 5.1.1). Elle dépasse d'environ 0,5 mm de la lentille percée ce qui peut engendrer une résonance en flexion. D'après l'annexe D.9, la fréquence de résonance d'une poutre encastree/libre est $f_{\text{fibre}} \approx \frac{3,5}{2\pi} \frac{1}{L^2} \sqrt{\frac{EI}{\rho S}}$. Pour un cylindre plein de diamètre D_c , $\frac{I}{S} = \frac{D_c^2}{8}$.

Le module de Young E du verre vaut 69 GPa, la masse volumique $\rho \sim 2,5 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ et le diamètre des fibres usinées est de 125 μm , ce qui donne $f_{\text{fibre}} \approx \frac{3,5}{4\pi} \frac{D}{L^2} \sqrt{\frac{E}{2\rho}} \sim 0,52 \text{ MHz}$.

En pratique, seules des conditions extrêmes pourraient correspondre à de telles vibrations. En effet, lorsqu'une très grande accélération est imposée sur l'actionneur piézoélectrique (par exemple dans le cadre de la mesure de finesse détaillée dans la partie C.2.2) une fréquence de $127 \pm 5 \text{ kHz}$ module parfois les pics de cavité (figure 4.3). Cette fréquence correspondrait à un dépassement de la fibre de $1,01 \pm 0,02 \text{ mm}$. L'écart avec la valeur estimée précédemment peut provenir d'une incertitude sur le dépassement de la fibre et de l'élasticité de la colle scellant l'encastrement ¹.

1. La condition de bord d'encastrement paraît réaliste à basse température mais n'est pas forcément idéale. Une condition de bord plus souple a tendance à décaler la résonance vers les basses fréquences.

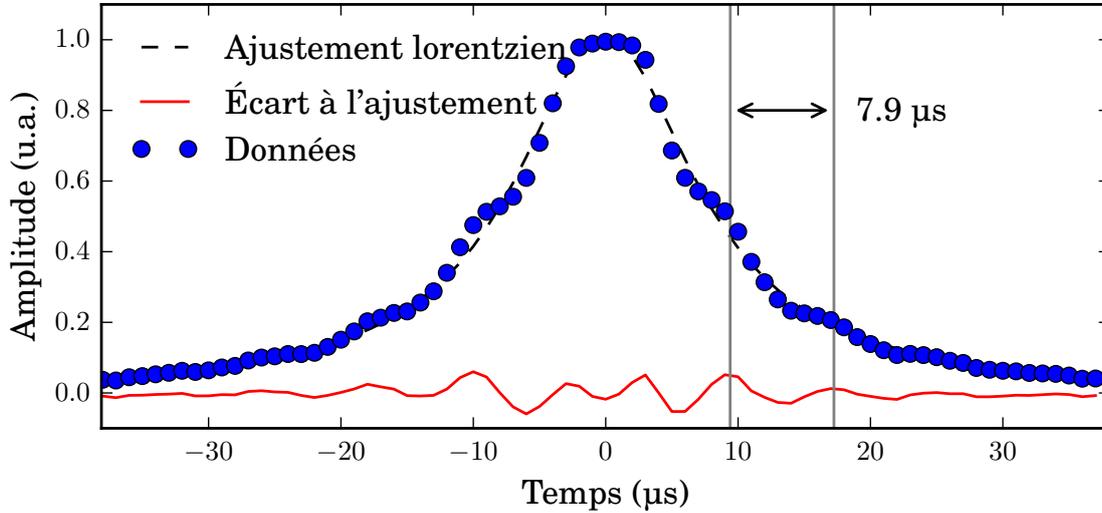


FIGURE 4.3 – Zoom d'un pic de transmission obtenu en sortie d'une photodiode en modulant rapidement ($f_{\text{mod}} = 600 \text{ Hz}$) la longueur de la micro-cavité excitée par une diode laser à 1310 nm. Une oscillation apparaissant sur le pic à une fréquence estimée à $127 \pm 5 \text{ kHz}$ (période de $7,9 \mu\text{s}$).

Ainsi, le dispositif est résumé à la figure 4.4 : la fibre usinée et l'échantillon sont supportés par des piles de nano-positionneurs relativement souples (même à basse température) qui sont elles-mêmes fixées à une plateforme isolée mécaniquement du doigt froid du cryostat.

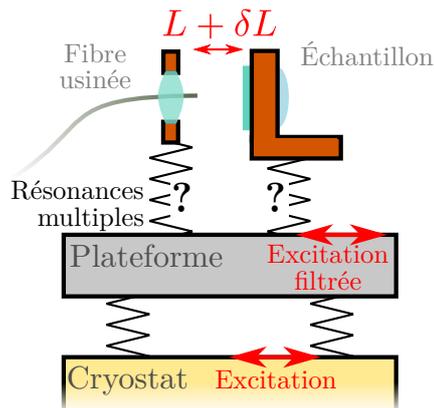


FIGURE 4.4 – Schéma mécanique simplifié du dispositif dans l'enceinte cryostatée. Les vibrations les plus contraignantes proviennent des résonances des piles de nano-positionneurs supportant la fibre usinée et l'échantillon.

Les vibrations proviennent de l'excitation d'un système comportant de multiples résonances par différentes sources décorréées. Pour identifier les leviers permettant de réduire ces fluctuations, il faut donc pouvoir estimer précisément leurs amplitudes.

4.1.2 Estimation des vibrations

La manière la plus simple d'estimer les vibrations est de profiter du signal d'interférence de la cavité optique. Comme détaillé dans la partie 4.1.2.1, en excitant la cavité en bord de bande de réflexion des miroirs, il est possible de linéariser la relation entre les fluctuations d'intensité transmise par la cavité et les vibrations mécaniques. Cela permet de fixer des objectifs de stabilité détaillés dans la partie 4.1.2.2. Par la suite, la valeur moyenne de la longueur de la cavité est notée L et les fluctuations δL . De même, d'un point de vue spectral, la longueur d'onde moyenne du mode considéré est notée λ_p et les fluctuations $\delta\lambda$. Pour le mode p , vient la relation :

$$\delta\lambda = \frac{2}{p}\delta L \quad (4.1)$$

4.1.2.1 Principe

Il faut pouvoir estimer précisément l'amplitude des vibrations pour pouvoir les contrôler. Pour ce faire, on utilise la dispersion linéaire d'un flanc de pic de cavité (la variation d'intensité transmise à travers la cavité est proportionnelle à sa variation de longueur). Un laser accordable est envoyé sur le flanc d'un pic de la micro-cavité et la lumière transmise est collectée par une photodiode². La largeur spectrale du laser est extrêmement fine (100 kHz c'est-à-dire inférieure à 1 pm pour les longueurs d'ondes concernées) devant la largeur typique des pics de transmission. Cela permet d'échantillonner précisément un déplacement du pic de transmission. En particulier, lorsque le laser est accordé sur le flanc du pic de cavité, une variation de $d\lambda$ due aux vibrations est proportionnelle à la variation d'intensité mesurée dI comme schématisé à la figure 4.5.

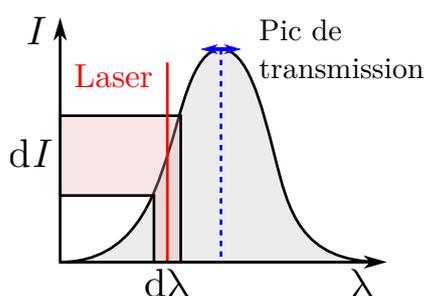


FIGURE 4.5 – Lorsque le laser est accordé au milieu du flanc d'un pic de transmission, un déplacement du pic de $d\lambda$ engendre une variation d'intensité dI mesurée par la photodiode.

D'après la partie 3.2.1.1, la transmission d'une cavité Fabry-Pérot s'écrit :

$$T = \frac{1}{1 + F \sin^2(kL)} \quad \text{où} \quad \left(\frac{2}{\pi}\mathcal{F}\right)^2 \underset{\mathcal{F} \gg 1}{=} F \quad (4.2)$$

2. Laser T100S-HP-CL Yenista Optics et photodiode PDA10CS-EC Thorlabs

F est le coefficient de finesse et \mathcal{F} est la finesse de la cavité. À mi-hauteur sur le flanc du pic, $T = \frac{1}{2}$ c'est-à-dire $F \sin^2(kL) = 1$ et $F \sin^2(k(L + dL)) \approx 1 \mp 2\sqrt{F(1 - \frac{1}{F})}kdL$. Les fluctuations d'intensités mesurées par la photodiode sont proportionnelles à :

$$dI \propto \pm 2\mathcal{F} \frac{dL}{\lambda_p} = \pm Q_{\text{cav}} \frac{d\lambda}{\lambda_p} \quad (4.3)$$

En pratique, pour accorder la longueur de cavité sur le flanc d'un pic, le profil de transmission est mesuré en fonction du déplacement par la méthode de la rampe décrite dans la partie C.2.1. Le signal en sortie de la photodiode est inversible tant que les vibrations restent dans une partie monotone du pic. En notant, I_{max} l'intensité maximale transmise et I_{min} l'intensité minimale due au bruit de fond, l'amplitude des vibrations s'écrit :

$$\delta L = \pm \frac{\lambda}{4\mathcal{F}} \left(\sqrt{\frac{I_{\text{max}}}{I - I_{\text{min}}}} - 1 - 1 \right) \quad (4.4)$$

Cette mesure des vibrations n'est fiable que si $\delta L < \frac{\lambda}{4\mathcal{F}}$. La finesse doit donc être choisie (via la longueur d'onde de travail) en fonction de l'amplitude des vibrations, c'est pourquoi un laser accordable entre 1500 et 1630 nm a été utilisé pour bénéficier de la variabilité de la finesse avec λ . Cette plage est centrée sur le bord de la bande de réflexion du miroir de Bragg et présente des finesse étalées sur deux ordres de grandeur.

4.1.2.2 Objectifs de stabilisation

Les fluctuations mécaniques de la longueur de cavité ne perturbent pas les effets de CQED puisqu'elles sont lentes devant le temps de vie de l'émetteur ou celui des photons dans la cavité (~ 100 ps) et celui de couplage (voir la partie 5.2.2.3). Par contre, elles sont plus rapides que le temps caractéristique d'acquisition des données (~ 1 s). Ainsi, l'accord spectral avec l'émetteur peut varier suffisamment sur le temps d'intégration pour lisser le signal observé. Les vibrations ne changent pas la physique du système mais complexifient son interprétation en brouillant les mesures.

Puisque les vibrations ne peuvent pas être totalement supprimées, il faut définir un critère de stabilité à partir duquel elle ne posent plus de difficultés. L'amplitude des fluctuations spectrales doit être plus petite que la largeur limitante du système : soit la largeur d'un pic de transmission, soit la largeur de PL de l'émetteur, soit la séparation de Rabi (dans le cas du couplage fort).

- Si $Q_{\text{cav}} < Q_{\text{ém}}$, les vibrations ne doivent pas déplacer le pic de transmission de la cavité de plus que sa largeur. Il vient $\delta\lambda < \frac{\lambda}{Q_{\text{cav}}}$ et donc :

$$\delta L < \frac{\lambda}{2\mathcal{F}} \quad (4.5)$$

Dans ce cas, le critère de stabilité ne dépend pas du mode de cavité p .

Pour une longueur d'onde $\lambda = 1310$ nm et une finesse $\mathcal{F} = 750$ (respectivement 5000), $\delta L_{\max} \approx 0,9$ nm (respectivement 0,1 nm).

- Si $Q_{\text{ém}} < Q_{\text{cav}}$, les fluctuations spectrales du pic de cavité ne doivent pas s'étendre sur plus de la largeur de PL de l'émetteur. Cela donne $\delta\lambda < \frac{\lambda}{Q_{\text{ém}}}$ et :

$$\delta L < \frac{p}{2} \frac{\lambda}{Q_{\text{ém}}} \quad (4.6)$$

La résolution obtenue permet aussi de différencier spectralement la raie à zéro phonon des ailes de phonons, car leur écart énergétique est de l'ordre du meV (voir la partie 1.2.2.2). Plus le mode est élevé, moins les vibrations posent problème. Cependant, plus le mode est élevé, plus le volume de cavité est grand et moins les effets de cavité recherchés sont intenses.

Pour un émetteur typique, l'émission est centrée à $\lambda = 1310$ nm et de largeur à mi-hauteur 0,4 nm (300 μeV). Ainsi, pour le mode $p = 5$, $\delta L_{\max} \approx 1$ nm.

- Si les facteurs de qualité de l'émetteur et de la cavité sont suffisamment élevés pour atteindre le régime de couplage fort, il faut pouvoir résoudre la séparation de Rabi. Dans ce cas l'émission est séparée en deux raies de pulsations $\omega \pm \sqrt{g^2 - \left(\frac{\kappa-\gamma}{4}\right)^2} \approx \omega \pm g$ comme explicité partie B.1. Il vient :

$$\delta L < \frac{g\lambda^2}{2\pi c} p \quad (4.7)$$

Dans le cas de nanotube de carbone en micro-cavité fibrée, $\hbar g$ est de l'ordre de 40 μeV [222]. Pour $\lambda = 1310$ nm et $p = 5$, $\delta L_{\max} \approx 0,3$ nm.

Dans cette thèse, le dispositif est principalement limité par la finesse de la cavité fibrée (chapitre 3). Un premier objectif est de **limiter l'amplitude des vibrations au nanomètre près**. En considérant une cavité fibrée parvenant à la finesse désirée (~ 5000) et les plus fines largeurs d'émission actuelles [35, 235, 236] ($< 100 \mu\text{eV}$) pour les CNT, il faudrait limiter les vibrations à un dixième de nanomètre. Ce dernier objectif ne pourrait être obtenu qu'avec la mise en place d'une stabilisation active.

Après la minimisation des vibrations de la cavité par des moyens purement mécaniques détaillés dans la partie suivante, la mise en place d'un asservissement en position est développé d'un point de vue théorique partie 4.3 et pratique partie 4.3.3.

4.2 Stabilisation passive

Différentes stratégies ont été employées pour diminuer au maximum les vibrations au niveau de la cavité en les filtrant en fréquence ou en les amortissant. Elles se décomposent en trois étapes :

- Un filtre mécanique isole la plateforme (définie à la figure 4.4) du reste du cryostat.
- Les vibrations relatives des deux piles supportant la fibre usinée et l'échantillon (figure 4.4) sont amorties par courants de Foucault.
- La partie 4.2.1.1 explique comment bénéficier d'un phénomène de raideur différentielle. Poser une lame directement sur les deux piles rigidifie la distance entre la fibre usinée et l'échantillon.

Le filtrage mécanique et l'amortissement par courant de Foucault n'ayant pas conduit à une diminution significative des vibrations, leur présentation est laissée en annexes dans les parties D.1.1 et D.1.2. Cette partie détaille uniquement la dernière étape, c'est-à-dire l'influence de la lame sur les deux piles de nano-positionneurs et dresse un bilan des vibrations à températures ambiante et cryogénique.

4.2.1 Atténuation des vibrations

L'étude du système à température cryogénique interdit tout frottement visqueux ou amortissement à l'aide de mousse de polymères. Cependant, il est possible de bénéficier des frottements solides pour rigidifier le système sans pour autant perdre la grande plage de mobilité des nano-positionneurs.

4.2.1.1 Frottements solides

Une lame de polycarbonate (PC) lestée a été posée sur les supports de la fibre usinée et de l'échantillon pour les solidariser comme représenté aux figures 4.6 et 4.7. Le PC, mentionné en annexe dans la partie D.1.1, a été choisi pour fabriquer la lame pour sa facilité d'usinage et sa transparence. En effet, l'accès optique par le dessus du dispositif est nécessaire afin de conserver la visualisation de l'approche de la fibre lors des expériences. La pointe de la fibre est d'ailleurs apparente figure 4.7.

Vue de dessus

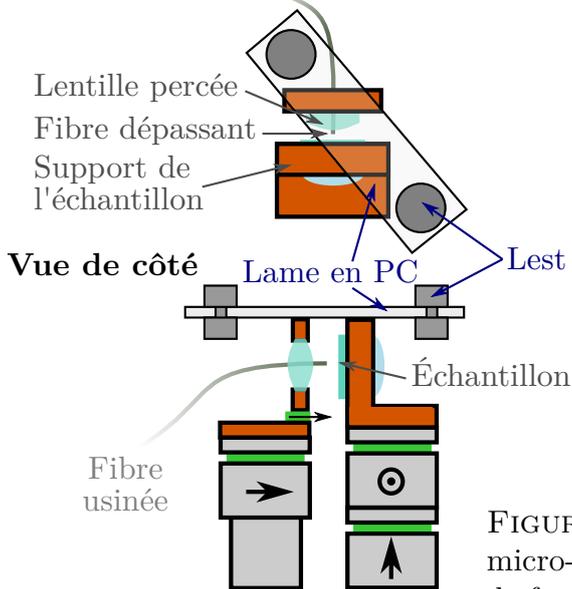


FIGURE 4.6 – Schéma d'une lame de polycarbonate exerçant des frottements solides entre les sommets de la pile soutenant la fibre usinée et celle soutenant l'échantillon.

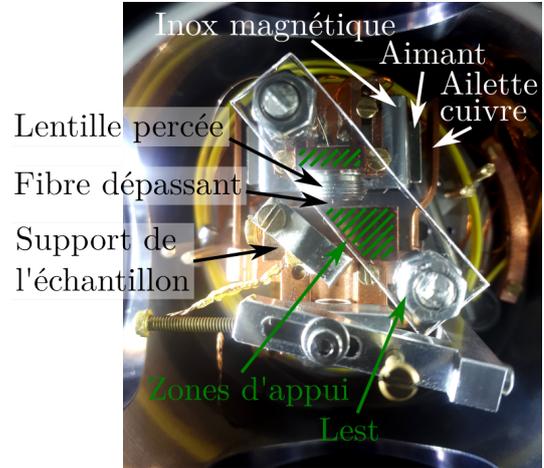


FIGURE 4.7 – Vue de dessus du dispositif de micro-cavité fibrée. Elle illustre les deux types de frottements mis en place : les annotations en blanc concernent l'amortissement par courant de Foucault et en vert les frottements solides. Ces derniers sont engendrés par une lame de polycarbonate lestée reposant à la fois sur le support de l'échantillon et celui de la lentille percée.

Les frottements solides se modélisent par les lois d'Amontons-Coulomb. Cette loi décrit le lien phénoménologique existant entre la force \mathbf{N} plaquant un mobile sur un support et la force tangentielle \mathbf{T} s'opposant au mouvement de ce mobile par rapport au support. Il ne peut y avoir de glissement que si la norme de la force \mathbf{F} qui le provoque est supérieure à $T_s = \mu_s N$ où μ_s est le coefficient de frottement statique. Dans ce cas, $T_d = \mu_d N$ où μ_d est le coefficient de frottement dynamique. N ne peut pas être augmenté indéfiniment pour supprimer les vibrations car les déplacements imposés aux nano-positionneurs doivent rester possibles. De plus, la charge maximale des nano-positionneurs ne doit pas excéder 50 g sachant que la charge sans lame atteint environ 20 g. La situation recherchée est une adhérence pour les vibrations et un glissement pour les nano-positionneurs.

Les coefficients de frottements statique et dynamique pour une surface PC/métal valent $\mu_d \approx \mu_s \approx 0,5$ à 300 K [242] et dépendent peu de la température [243]. La masse m_f du lest et de la lame est de 3 g. La masse typique m est estimée à ~ 10 g (masse d'un nano-positionneur) et 10 nm constituent une grande amplitude a_v de vibrations pour une fréquence $f_v = 165$ Hz.

Adhérence pour les vibrations : La pseudo-force $F_v = (2\pi f_v)^2 a_v m$ due à l'accélération vaut 0,1 mN et $\mu_s N = \mu_s m_f g \approx 15$ mN. $F_v \ll \mu_s N$, il n'y a pas de

glissement.

Glissement pour les nano-positionneurs : Le nano-positionneur inertiel peut déployer une force $F_p = 1 \text{ N}$ à 300 K sans charge. $F_p \gg \mu_s N$, il y a glissement mais la vitesse sera réduite à cause des frottements. Cependant, F_p est susceptible de varier significativement en fonction de la masse supportée par le positionneur et la température. Les spécifications de l'actionneur piézoélectrique rapide ne permettent pas de savoir s'il y a glissement ou non.

Une absence de glissement ne signifie pas une suppression totale des vibrations. En effet, la lame agit comme un ressort en compression associé à un léger amortissement comme expliqué en annexe partie D.1.1. L'amortissement n'est plus dû à des frottements solides mais à des processus inélastiques au sein de la lame de PC.

La distance entre les deux supports est $l \approx 4 \text{ mm}$, la largeur et l'épaisseur de la lame sont $h \approx 1 \text{ cm}$ et $e = 0,75 \text{ mm}$. La masse caractéristique m est estimée à $\sim 14 \text{ g}$ (masse d'un nano-positionneur et de la moitié de la lame lestée qui est supportée par les deux piles). Le module de Young Y du PC à basse température est d'environ 10 GPa (et 2 GPa à 300 K). La fréquence de résonance de la lame en compression est $f_c = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{Yhe}{ml}} \approx 6 \text{ kHz}$ (soit 2,6 kHz à 300 K). Cette fréquence est surestimée, car elle ne prend en compte que la compression de la poutre et néglige celle des supports métalliques. Un ordre de grandeur du facteur de qualité de cette résonance est $Q \sim \frac{Y}{Y_{\text{pertes}}} \approx 80$ [244].

Cette modélisation est limitée par le couplage acoustique entre les supports et la lame. De plus, puisque l'amplitude des vibrations est du même ordre de grandeur (voire inférieure) que la rugosité de surface, le coefficient de frottement peut varier. A priori, le coefficient de frottement diminue logarithmiquement avec la vitesse [245] mais la nano-tribologie reste un sujet de recherche très actif. En pratique, la lame lestée a un effet marqué sur les vibrations. La figure 4.8 représente l'amplitude des vibrations jusqu'à 600 Hz avec et sans une lame lestée de 3 g. Les pics de vibrations de référence (courbe noire) diminuent en intensité en présence de la lame lestée (courbe rouge). Une diminution d'un facteur ~ 3 de la déviation standard σ des vibrations entre 10 Hz et 600 Hz est observée. Il est difficile d'interpréter la différence des spectres car le lest change aussi la réponse des piles aux vibrations, d'où l'apparition de nouveaux pics.

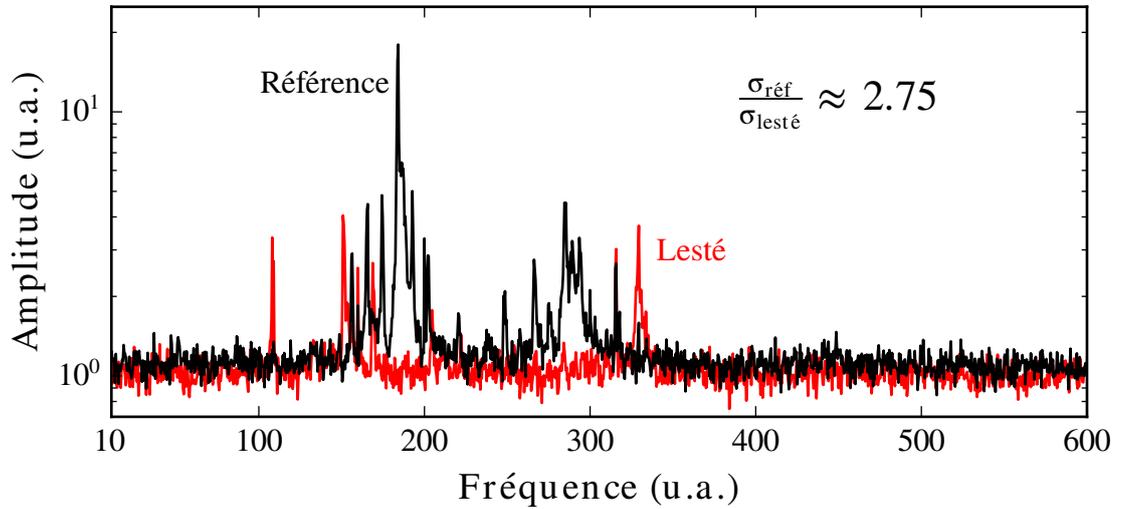


FIGURE 4.8 – Amplitude des vibrations de la micro-cavité en fonction de la fréquence avec (courbe rouge) et sans (courbe noire) lame lestée de 3 g à chaud. Une translation d’un pic de vibration est due à deux contributions : une rigidification du système (vers les hautes fréquences) et un ajout de masse (vers les basses fréquences). Les deux spectres de vibrations ne sont pas directement comparables puisque le système mécanique est modifié par l’ajout de la lame lestée. Néanmoins, l’écart-type σ des vibrations est réduit de presque un facteur 3.

4.2.1.2 Raideur différentielle

L’influence de la lame lestée peut-être vue comme un effet de raideur différentielle. La figure 4.10 représente deux raideurs très différentes mises en parallèle et un actionneur intercalé entre le support et la raideur la plus faible. L’amplitude d’un mouvement transmis au système par l’actionneur est pondéré par le rapport des raideurs. La lame lestée joue le rôle de la raideur élevée tandis que les piles supportant la fibre et l’échantillon joue le rôle de la raideur faible (voir figure 4.9).

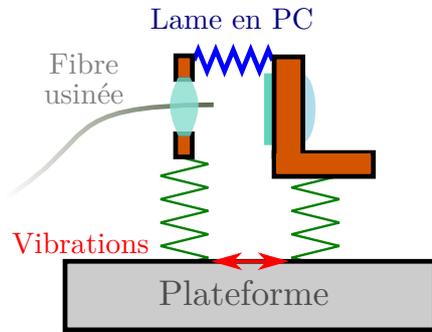


FIGURE 4.9 – Schéma équivalent du dispositif mettant en relief la situation de raideur différentielle.

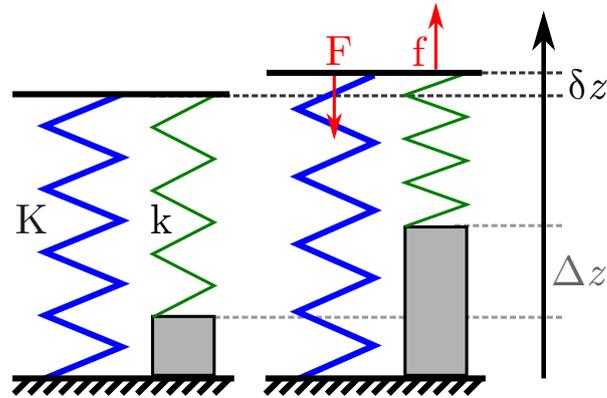


FIGURE 4.10 – Deux ressorts de raideur K et k tels que $K \gg k$ sont mis en parallèle entre un support et une pièce mobile. Un actionneur piézoélectrique est intercalé entre le support et le ressort de plus faible raideur. Pour une dilatation Δz de l'actionneur, $F + f = -K\delta z + k(\Delta z - \delta z) = 0$ donc la pièce se soulève de $\delta z \approx \frac{k}{K}\Delta z$.

La réduction apportée par cet effet de raideur différentiel est flagrante contrairement aux cas de filtrage mécanique et d'amortissement par courant de Foucault détaillés dans l'annexe D.1. Toutefois, l'atténuation pourrait a priori être plus efficace étant donné que la lame lestée est déportée par rapport à l'axe de la cavité. Les modes de torsion autour des points de pivot lame/support ne sont pas rigidifiés par la lame.

4.2.2 Bilan à températures ambiante et cryogénique

La lame de PC a permis de réduire l'amplitude des vibrations par effet de raideur différentielle en restant compatible avec les températures cryogéniques. Les résultats obtenus ainsi que les points d'amélioration envisagés sont détaillés ci-dessous.

4.2.2.1 Comportement à température ambiante

Bien qu'il soit difficile de découpler l'influence de chaque élément, l'amplitude des vibrations a été comparée avant et après la mise en place de la stabilisation passive. Sous vide et à température ambiante, la longueur de cavité atteignait des écarts-types de l'ordre de 3 nm sans stabilisation passive. Actuellement, ces fluctuations sont sub-nanométriques, soit un facteur 3 d'atténuation. Ce facteur 3 laisse penser que l'amélioration est due principalement à la lame lestée décrite dans la partie 4.2.1.1. Deux signaux typiques de vibrations sont présentés à la figure 4.11.

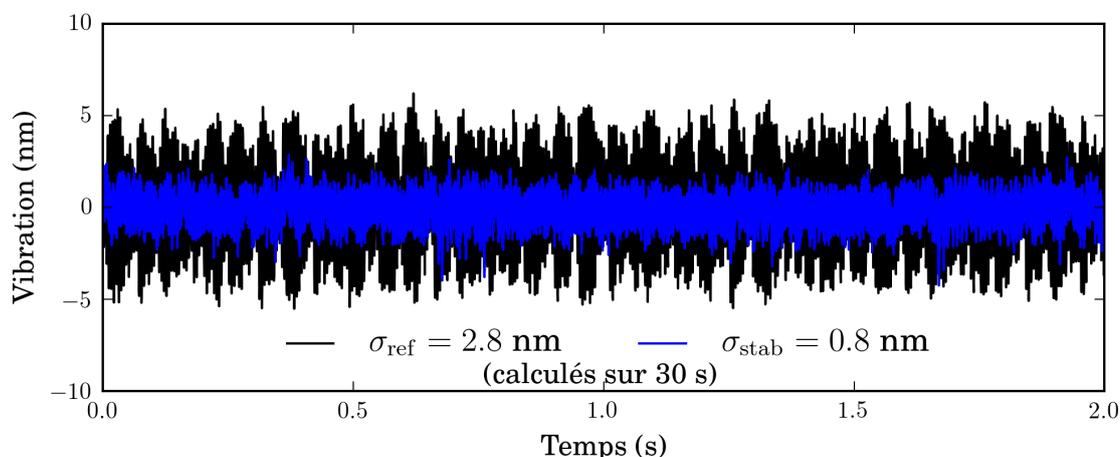


FIGURE 4.11 – Amplitudes des vibrations avant (en noir, 'ref') et après (en bleu, 'stab') stabilisation passive à température ambiante. Pour pouvoir visualiser les fluctuations, les signaux ont été tracés sur une durée de 2 s mais les écarts-types σ_{ref} et σ_{stab} ont été calculés sur 30 s.

Pour avoir une idée de la répartition fréquentielle des vibrations, la somme quadratique cumulée de la transformée de Fourier discrète normalisée de l'amplitude des vibrations a été tracée figure 4.12. Les vibrations sont en grande partie basse fréquence : elles se situent à 80% en dessous de 200 Hz. Cela donne une fréquence de coupure pour la stabilisation active abordée à la partie 4.3.

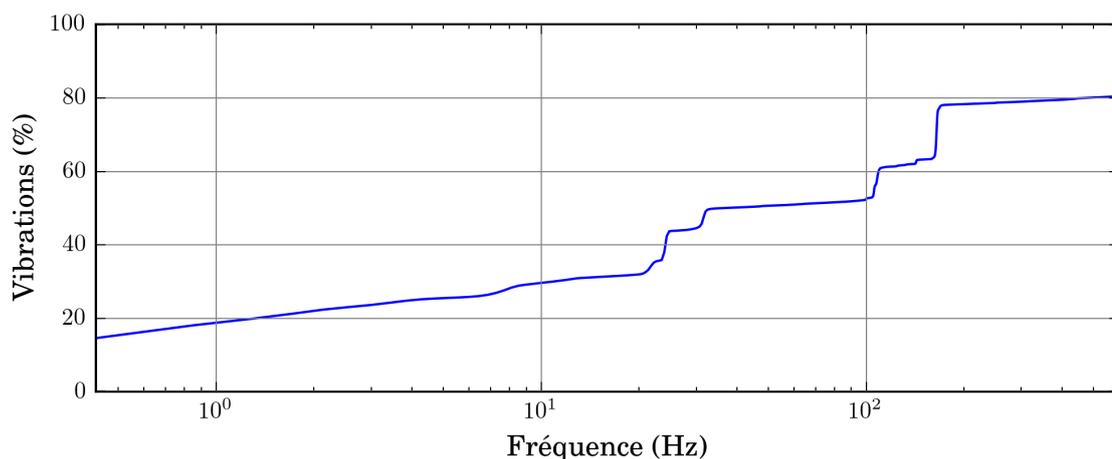


FIGURE 4.12 – Pourcentage de l'écart-type des vibrations en dessous d'une fréquence de coupure à température ambiante. Ce pourcentage est calculé à partir de la somme quadratique de la transformée de Fourier discrète des vibrations (l'intégrale sur tout le spectre vaut l'écart-type, 100% \Leftrightarrow 0,8 nm).

4.2.2.2 Transmission de la cavité à basse température

Les méthodes d'atténuations employées ont été choisies pour être compatibles avec les températures cryogéniques. Ainsi, par commodité, la plupart des études de vibrations sont menées à température ambiante. Néanmoins, la stabilisation passive est particulièrement critique à température cryogénique pour limiter les vibrations induites par le fonctionnement du cryostat à circuit fermé. L'impact de ces fluctuations se manifeste principalement par un élargissement du pic de transmission de la cavité. C'est pourquoi une comparaison de la largeur de ce pic avec et sans lame de PC est présentée sur la figure 4.13.

La transmission réelle de la cavité étant lorentzienne et de largeur connue (grâce aux mesures présentées dans l'annexe C.2) et considérant les vibrations gaussiennes, les pics de transmission sont ajustés par une fonction de Voigt prenant comme seule variable l'amplitude spatiale des vibrations. Les ajustements donnent un facteur 4 d'atténuation des vibrations à température cryogénique grâce à la lame de PC. Ce n'est pas surprenant que l'atténuation soit plus importante qu'à température ambiante (figure 4.8) puisque la raideur d'une lame en polymère augmente plus vite lors du passage à froid qu'une céramique ou un métal. Ainsi, la raideur de la lame de PC augmente plus vite que celle des nano-positionneurs, ce qui amplifie l'effet de raideur différentielle (proportionnel au rapport de ces raideurs).

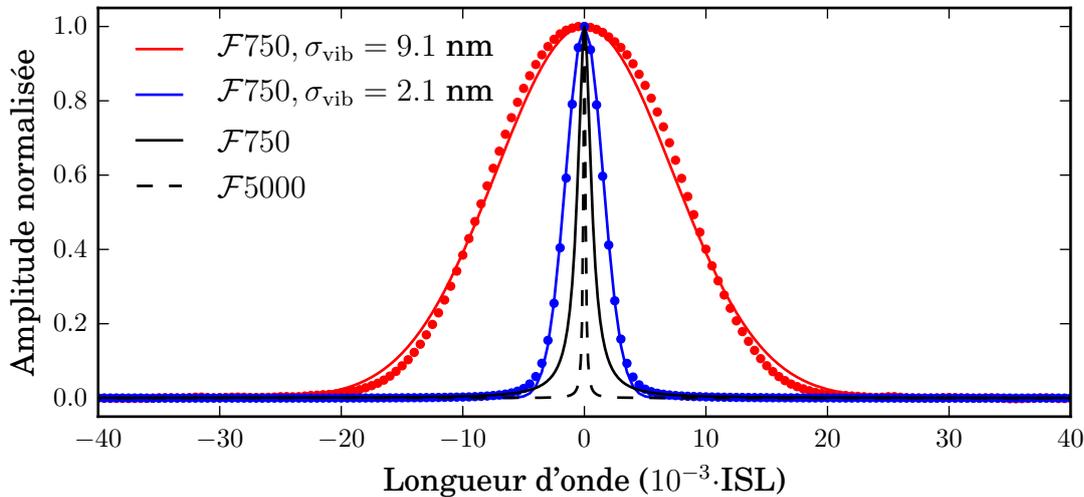


FIGURE 4.13 – Transmission à température cryogénique d'une même micro-cavité de finesse environ 750 avant (points rouges) et après (points bleus) la mise en place de la lame décrite dans la partie 4.2.1.1. Ces pics de transmission ont été ajustés par une lorentzienne de finesse 750 élargie par des vibrations (pour $\lambda = 1310$ nm). Les pics de transmissions théoriques des finesesses 750 et 5000 ont été tracés (en noir continu et pointillé) comme référence.

Malgré les progrès réalisés, pour la micro-cavité considérée ($\mathcal{F} \approx 750$), les vibrations élargissent encore le pic de transmission d'un facteur 2 et, pour une finesse

idéale d'environ 5000, l'élargissement serait d'un facteur 10. L'objectif d'amplitude de vibrations annoncé dans la partie 4.1.2.2 n'est pas atteint à température cryogénique. Toutefois, il est toujours possible d'améliorer le système. Par exemple, l'effet de raideur différentiel utilisé pour solidariser les supports de la fibre et de l'échantillon n'a pas encore été optimisé bien qu'il semble être le levier principal pour atténuer les vibrations. D'autres idées d'amélioration sont proposées dans l'annexe D.1.3.

4.3 Stabilisation active

La longueur de cavité est moins soumise aux vibrations grâce à la stabilisation passive. Cependant, rien ne s'oppose directement aux fluctuations ou aux dérives. Comme le dispositif est conçu pour que L soit ajustable facilement sur une très large plage, il faut définir une longueur de consigne L_{cons} .

Cela implique la création d'une force de rappel ajustable afin de ramener la longueur de cavité autour de L_{cons} . Si le temps de réponse associé à cette force de rappel est inférieur au temps caractéristique des fluctuations, ces dernières sont compensées au même titre que la dérive. La stabilisation active de la cavité revient donc à mettre en place une rétroaction suffisamment rapide pour maintenir L à proximité de L_{cons} même en présence de fluctuations. L'actionneur piézoélectrique rapide présenté à la partie 4.1.1.2 a été inclus dans ce but.

4.3.1 Principe de boucle de rétroaction

4.3.1.1 Réponse en boucle ouverte et en boucle fermée

Pour stabiliser la cavité, il faut mesurer sa longueur L compenser un éventuel écart à la valeur consigne L_{cons} par un déplacement. Trois éléments schématisés figure 4.14 doivent être implémentés :

- La mesure de L aussi appelée signal d'erreur, ce signal est homogène à une tension.
- Le contrôle en position \mathcal{P} de l'actionneur piézoélectrique. Bien qu'assez complexe en pratique, la réponse de l'actionneur piézoélectrique est en première approximation un filtre passe-bas de premier ordre. Ainsi, dans l'espace de Fourier, cette réponse appelée vaut $\mathcal{P} = \frac{a}{1+i\frac{\omega}{\omega_0}}$, où a est une constante positive en nm/V.
- Un gain \mathcal{K} permettant d'adapter l'amplitude de la tension en sortie de la mesure à l'entrée du contrôle. La forme la plus courante de \mathcal{K} est $K_p + \frac{1}{i\omega}K_i + i\omega K_d$ c'est-à-dire avec trois termes 'proportionnel' (K_p), 'intégral' (K_i) et 'dérivatif' (K_d). Cela donne l'acronyme PID couramment utilisé. Dans ce travail de thèse, le gain utilisé ne comporte pas de terme dérivatif; il s'agit d'un gain PI. En

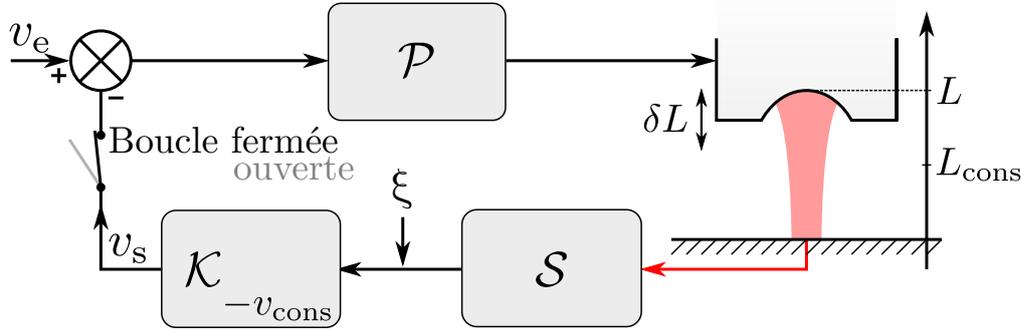


FIGURE 4.14 – Schéma de la boucle de rétroaction. \mathcal{S} , \mathcal{K} et \mathcal{P} représentent respectivement les fonctions de transfert de la mesure du signal d’erreur, du gain appliqué à ce signal et du contrôle de la longueur via le actionneur piézoélectrique rapide. Les fluctuations à compenser sont d’amplitude δL et le bruit ξ sur la mesure d’amplitude.

outre, pour une première approche de la rétroaction, seul le terme proportionnel est pris en compte dans cette partie 4.3.1.1.

Puisque la causalité a une importance significative dans ce contexte et que la transformée de Fourier est plutôt destinée à l’analyse de régime permanent, le problème de stabilisation sera exprimé en transformée de Laplace³. Le contrôle en position devient, $\mathcal{P} = \frac{a}{1+s}$ où ω_0 est normalisé à 1 pour plus de lisibilité.

Dans ce problème, la variable expérimentale est la tension imposée au contrôle. La tension d’entrée est notée v_e et donne une tension de sortie v_s après la mesure puis le gain telle que :

$$v_s = \mathcal{KSP}v_e \quad (4.8)$$

La chaîne Contrôle-Mesure-Gain, \mathcal{KSP} , forme la réponse en *boucle ouverte* :

$$\frac{v_s}{v_e} = \mathcal{KSP} = \frac{G_{\text{BO}}}{1+s} \quad \text{où } G_{\text{BO}} \equiv K_p \mu a \text{ (boucle ouverte)}. \quad (4.9)$$

G_{BO} désigne le gain en boucle ouverte à fréquence nulle. La rétroaction se met en place en remplaçant v_e par $v_e - v_s$ en entrée du contrôle. Ainsi $v_s = \mathcal{KSP}(v_e - v_s)$, cela donne la réponse en *boucle fermée* :

$$\frac{v_s}{v_e} = \frac{\mathcal{KSP}}{1 + \mathcal{KSP}} = \frac{G_{\text{BO}}}{1 + G_{\text{BO}}} \frac{1}{1 + \frac{1}{1+g}s} \text{ (boucle fermée)}. \quad (4.10)$$

La réponse du système change significativement lorsque la rétroaction est mise en place. Une instabilité survient pour $\mathcal{KSP} = -1$. De plus, pour un gain $G_{\text{BO}} = 1$ en boucle ouverte, le gain en boucle fermée est de $\frac{1}{2}$ et la pulsation propre du système devient $2\omega_0$.

3. La transformée de Laplace $\mathcal{T}_{\mathcal{L}}$ est définie par $\mathcal{T}_{\mathcal{L}}[y(t)] = y(s) \equiv \int_0^{\infty} y(t)e^{-st} dt$.

Dans le cas des cavités (voir annexe D.2.2), la mesure de longueur de la cavité n'est en général pas absolue mais relative à une longueur de référence $\mathcal{S}(L) = \mu(L - L_{\text{ref}})$ où μ est une constante positive en V/nm. En pratique, cette longueur de référence fait aussi office de longueur consigne ($L_{\text{ref}} = L_{\text{cons}}$), ce qui impose $v_e = 0$. Dans les calculs précédents, tout se passe comme si $\mathcal{S}(L) = \mu L$ et $v_e = -\frac{L_{\text{cons}}}{a}$.

En considérant des fluctuations de la longueur de cavité δL et une tension d'entrée, cette rétroaction met bien en place une stabilisation :

- En boucle ouverte, l'écart $L - L_{\text{cons}}$ à la valeur consigne s'identifie aux fluctuations δL . Il est mesuré expérimentalement par $v_{s,\text{BO}} = \mathcal{K}\mathcal{S}\delta L$.
- En boucle fermée, $L - L_{\text{cons}} = \delta L - \mathcal{P}v_s = \delta L - \mathcal{P}\mathcal{K}\mathcal{S}(L - L_{\text{cons}})$ donc $L - L_{\text{cons}} = \frac{1}{1+\mathcal{K}\mathcal{S}\mathcal{P}}\delta L$. Ainsi, tant que les vibrations sont moins rapides que ω_0 , l'amplitude des fluctuations δL est diminué d'un facteur $1 + G_{\text{BO}}$. La mesure en boucle fermée donne $v_{s,\text{BF}} = \frac{\mathcal{K}\mathcal{S}}{1+\mathcal{K}\mathcal{S}\mathcal{P}}\delta L = \frac{v_{s,\text{BO}}}{1+\mathcal{K}\mathcal{S}\mathcal{P}}$.

Par la suite, la pulsation ω_0 est supposée suffisamment grande pour que la rétroaction soit très rapide devant les vibrations. Même dans ces conditions, le bon fonctionnement de la stabilisation dépend d'un certain nombre d'hypothèses. Elles sont résumées dans la partie suivante.

4.3.1.2 Sources d'instabilité et gain intégral

L'effet de stabilisation semble d'autant plus marqué que K_p est grand : $\frac{1}{1+\mathcal{K}\mathcal{S}\mathcal{P}} \rightarrow 0$. Cependant, un bruit ξ sur la mesure (voir le schéma figure 4.14) donne $\mathcal{S}(L) = \mu(L - L_{\text{cons}}) + \xi$ ce qui engendre un écart à la valeur consigne : $L - L_{\text{cons}} = \frac{1}{1+\mathcal{K}\mathcal{S}\mathcal{P}}(\delta L - \mathcal{P}\mathcal{K}\xi)$. Pour des bruits basses fréquences, $L - L_{\text{cons}} = \frac{1}{1+g}(\delta L - G\frac{\xi}{\mu})$. La rétroaction est donc limitée par le bruit de mesure : il faut que G vérifie $\max(\delta L) > \frac{G_{\text{BO}}}{\mu} \max(\xi)$ donc, en pratique, que $K_p < \frac{\max(\delta L)}{a \max(\xi)}$. Si les fréquences typiques de δL et ξ sont très différentes, le bruit ξ peut être filtré en entrée du gain \mathcal{K} .

Étant donné que K_p est limité, une dérive lente est réduite mais n'est pas entièrement compensée. $L - L_{\text{cons}} = \frac{1}{1+G_{\text{BO}}}\delta L$ donc si δL diverge, $L - L_{\text{cons}}$ diverge aussi. Pour s'affranchir de ce problème, un gain intégral est utilisé : \mathcal{K} devient $K_p + \mathbf{K}_i \frac{1}{s} = K_p \left(1 + \frac{\omega_i}{s}\right)$ avec ω_i exprimé en unité de ω_0 . Cette solution permet de supprimer la dérive sans pour autant amplifier le bruit ξ , car elle cible principalement les très basses fréquences.

Dans le cas d'un système réaliste, la fonction de transfert du contrôle en position \mathcal{P} est rarement du premier ordre (voir la partie 4.3.2.1). Lorsqu'un gain intégral est introduit, l'ordre de la fonction de transfert en boucle ouverte est donc en général supérieur à 2, ce qui pose une difficulté supplémentaire. En effet, une fonction de transfert d'un système du $n^{\text{ième}}$ ordre présente un terme en s^n au dénominateur, le retard de phase maximal est de $n\frac{\pi}{2}$ [246]. À partir du troisième ordre, une fonction de transfert peut atteindre un retard de phase de π pour une fréquence finie. Pour

une telle fonction de transfert en boucle ouverte, une instabilité peut donc survenir en boucle fermée même si le système est stable à basse fréquence. Prenons l'exemple d'un contrôle \mathcal{C} du deuxième ordre avec un facteur de qualité Q et considérons un gain purement intégral $\frac{K_i}{s}$ (gain en boucle ouverte $G = K_i \mu a$), $\mathcal{KSP} = \frac{G_{BO}}{s(1 + \frac{1}{Q}s + s^2)}$. Une instabilité apparaît si \mathcal{KSP} atteint la valeur -1 , c'est-à-dire si $s = i$ (en unité de ω_0) et $G = \frac{1}{Q}$. Le système commence donc à osciller à la pulsation ω_0 dès que $G > \frac{1}{Q}$.

En outre, un délai Δt dû à la propagation de l'information dans la boucle ouverte augmente le retard de phase. Ce type de comportement peut éventuellement provenir de la réponse lente du capteur effectuant la mesure, d'un filtrage en fréquence ou du convertisseur analogique/numérique. Il se traduit par une réponse $e^{-s\Delta t}$ et provoque aussi une instabilité si $\omega\Delta t - \arg(\mathcal{KSP}) = \pi$ lorsque $|\mathcal{KSP}| = 1$.

Du fait de ces différentes sources d'instabilité, il est difficile d'optimiser les paramètres de gain K_p et K_i d'une boucle de rétroaction. Il existe cependant des critères heuristiques tels que ceux de Ziegler et Nichols [247] détaillés à la partie 4.3.3.1.

Pour mettre en place la stabilisation, il faut donc caractériser les fonctions de transfert \mathcal{K} , \mathcal{S} et \mathcal{P} pour repérer les résonances afin d'éviter une instabilité du système et vérifier que la rétroaction peut être plus rapide que les fluctuations et identifier les sources de bruits.

4.3.2 Fonction de transfert de la rétroaction

Dans le dispositif, certains éléments sont bien établis : la génération de signal, le filtrage et le gain \mathcal{K} sont assurés par une carte FPGA (*Field-Programmable Gate Array*) et, le contrôle \mathcal{P} de la position, par un actionneur piézoélectrique (voir 4.2). Par contre, différentes techniques peuvent être mises en place pour mesurer l'écart de la longueur de cavité à la valeur consigne.

La première partie présente à la fois les caractéristiques de la carte FPGA et de l'actionneur piézoélectriques pertinentes dans le cadre de la stabilisation active. La seconde partie présente la technique utilisée pour construire le signal d'erreur sur la longueur de la micro-cavité fibrée.

4.3.2.1 Réponse des appareils fixes

Réponse de l'actionneur piézoélectrique L'actionneur sélectionné P-111.01T PICA PhysikInstrumente est un empilement de céramiques piézoélectriques permettant un déplacement en cisaillement à température ambiante comme cryogénique. D'après le constructeur, il possède une course de $1,0 \pm 0,3 \mu\text{m}$ à température ambiante pour une plage de tension de $\pm 250 \text{ V}$. Il est associé à un amplificateur $\times 100$ en tension HT E-508.00 PhysikInstrumente possédant une bande-passante d'une dizaine de kilohertz suivant la capacité électrique de l'actionneur. La réponse basse

fréquence de l'actionneur est caractérisée à températures ambiante et cryogénique dans l'annexe D.2.1. La course totale de l'actionneur a été mesurée à $0,9\ \mu\text{m}$ à température ambiante en accord avec les spécifications. Cela correspond à un déplacement a d'environ $180\ \text{nm/V}$. À température cryogénique le déplacement est 8 fois moins ample : a vaut environ $22\ \text{nm/V}$.

D'après la partie 4.3.1.2, l'étude de la réponse en fréquence du système actionneur et amplificateur est fondamentale pour construire une rétroaction efficace. Pour évaluer cette réponse tracée figure 4.15, une modulation sinusoïdale est imposée à l'actionneur piézoélectrique et l'amplitude de déplacement du pic de transmission de la cavité est mesurée (la méthode est identique à celle utilisée lors de la mesure de la finesse détaillée dans la partie C.2.2). Cependant, cette méthode comporte quelques désavantages :

- Elle n'est valable que lorsque la modulation de la cavité est grande devant les fluctuations.
- Elle ne donne pas accès à la phase.
- Elle est très lente ce qui n'est pas pratique car la réponse de l'actionneur doit être mise à jour à chaque modification dans l'enceinte du cryostat.

Pour rendre plus systématique cette étude, le signal d'estimation des vibrations (voir la partie 4.1.2.1) est utilisé préférentiellement à l'analyse spectrale. Ce dernier est envoyé vers une détection synchrone SR830 Stanford Research Systems qui calcule directement l'amplitude et la phase. Les deux méthodes donnent un résultat sensiblement équivalent (voir la figure 4.15) tant que le gain n'est pas trop faible, c'est-à-dire tant que la modulation domine les vibrations. La réponse est relativement plate jusqu'à atteindre une résonance très marquée à environ $700\ \text{Hz}$.

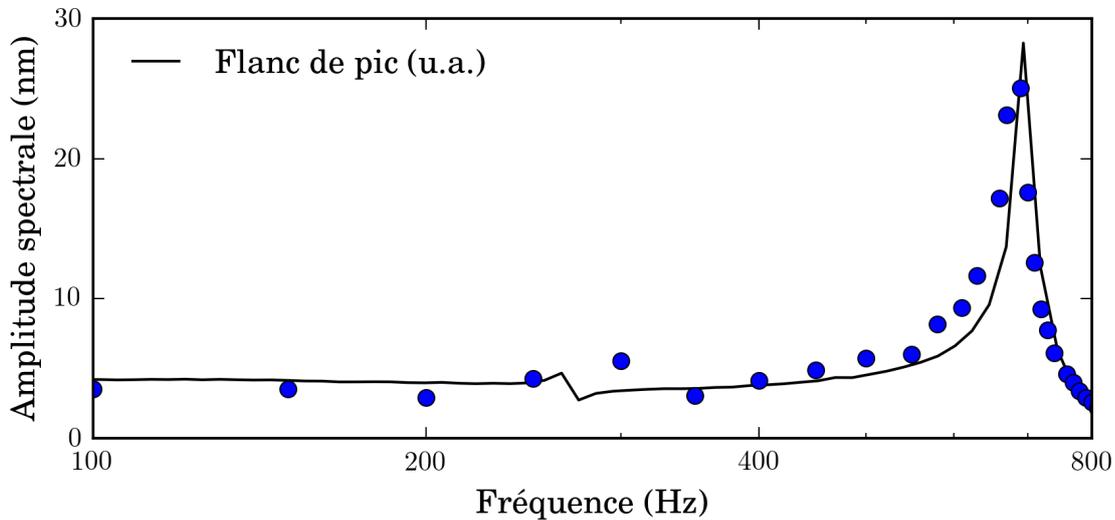


FIGURE 4.15 – Amplitude de la réponse en fréquence de l’actionneur piézoélectrique obtenue par analyse spectroscopique (points bleus) et celle obtenue par détection synchrone de la transmission hors-résonance en flanc de pic (en unité arbitraire, ligne noire).

La méthode utilisant une détection synchrone est plus fiable, car les fluctuations à une autre fréquence que celle de modulation sont filtrées, ce qui permet d’évaluer de faibles amplitudes de modulation. La figure 4.16 compare la réponse de l’actionneur à température ambiante avec et sans lest (voir à la partie 4.2.1.1) et à température cryogénique. La phase est représentée cumulée (un déphasage de 2π est bien représenté et n’est pas ramené dans l’intervalle $[-\pi, \pi]$). Toutefois, par manque de résolution en amplitude ou en fréquence, un saut de phase et un pic de phase ne peuvent pas forcément être différenciés. La résonance à environ 10 kHz provient a priori de la fréquence de coupure de l’amplificateur haute-tension. En effet, elle varie lors du passage à froid (variation de la capacité électrique du piézoélectrique) mais ne change pas en présence du lest.

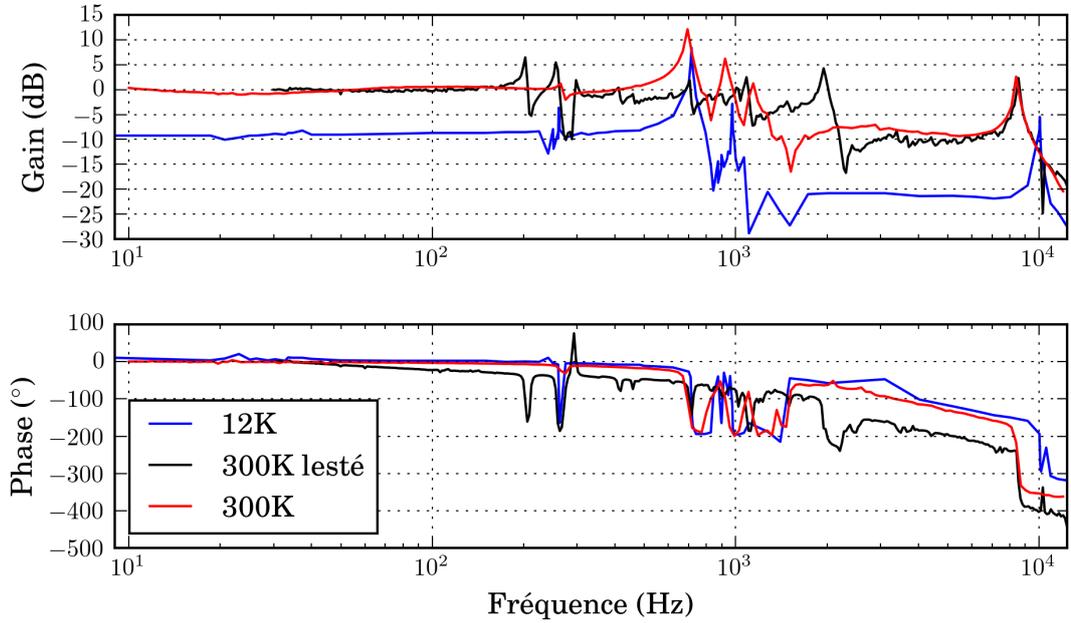


FIGURE 4.16 – Diagramme de Bode de la réponse en position de la cavité lorsqu’une tension est imposée à l’actionneur piézoélectrique rapide. Le gain est normalisé par le gain statique à chaud (184 nm/V). Les courbes rouge et bleue permettent de comparer la réponse à 300 K et à 10 K. Les courbes noire et rouge comparent la réponse à chaud avec et sans lest (voir partie 4.2.1.1).

Pour des fréquences inférieures à 200 Hz, le gain est constant et il n’y a aucun saut de phase supérieur à 90° . Pour résumer, l’actionneur a une réponse suffisamment rapide (coupure à ~ 10 kHz) pour ne pas engendrer d’instabilité à des fréquences inférieures à 200 Hz. D’après la figure 4.12, 80% des vibrations ont une fréquence inférieure à 200 Hz et peuvent donc être compensées par des déplacements de l’actionneur.

Réponse de la carte FPGA Le modèle de carte FPGA [248] choisi est commercialisé sous le nom de RedPitaya. A priori, ce type de carte permet de programmer n’importe quel type de filtre à partir d’un réseau de portes logiques. Il possède deux entrées et deux sorties ± 1 V de 14 bits⁴ ce qui équivaut à une amplitude minimale de $\frac{2}{2^{14}} \approx 0,12$ mV. La fréquence d’échantillonnage de 125 MHz suffit largement pour suivre les fluctuations de la longueur de cavité. Cette carte est modulable et facile d’utilisation. Cependant, les entrées et sorties peuvent introduire des non-linéarités et du bruit lors des conversions analogiques/numériques. Pour vérifier que ces problèmes

4. Il s’agit d’une spécification donnée par le constructeur ne prenant pas en compte le bruit réel de l’appareil.

ne sont pas limitants pour la rétroaction, le rapport signal sur bruit et distorsion a été caractérisé dans l'annexe [D.2.1](#).

En pratique, le défaut majeur du RedPitaya est qu'une partie de son bruit d'alimentation se répercute sur les sorties [249]. Dans notre cas, ce phénomène abaisse artificiellement le nombre de bits à $10,9 \pm 0,1$ bits. Ainsi, l'amplitude minimale de la variation de tension en sortie de la carte est de 1,2 mV.

Le bruit de 1,2 mV correspond à un déplacement de 0,22 nm à température ambiante et à 0,03 nm à température cryogénique. Puisque les vibrations sont de l'ordre de 0,8 nm à température ambiante, un atténuateur entre la carte FPGA et l'amplificateur de l'actionneur est nécessaire pour que le bruit soit nettement inférieur aux vibrations. En pratique, une atténuation d'un facteur 25 en sortie de la carte permet toujours de compenser des vibrations de 10 fois l'écart-type et fait passer le bruit à 0,01 nm.

4.3.2.2 Recherche d'un signal d'erreur

La mesure \mathcal{S} fournit une tension proportionnelle à l'écart à la valeur consigne de longueur de cavité appelée signal d'erreur. Dans le cadre de la stabilisation de cavité optique, construire un signal d'erreur est une procédure courante très documentée (par exemple dans le cadre des horloges atomiques [250] ou de la détection d'ondes gravitationnelles). Il existe trois méthodes de mesure standards : la stabilisation directe sur le flanc d'une résonance de la cavité [251], la méthode de Pound, Drever et Hall (PDH) [252] et celle de Hänsch et Couillaud (HC) [253]. Une étude préliminaire de ces trois méthodes appliquées aux caractéristiques de la micro-cavité fibrée est détaillée dans l'annexe [D.2.2](#).

Cependant, il existe une contrainte expérimentale supplémentaire due à l'excitation en cavité des nanotubes de carbone dans notre dispositif. L'émission des CNT est très peu intense et, pour éviter d'éblouir le détecteur, une excitation de la cavité à résonance n'est pas souhaitable. Mais, une excitation à plus haute énergie est susceptible d'apporter des charges photo-induites qui pourraient engendrer un élargissement de l'émission des nanotubes de carbone par effet Stark (voir la partie [1.2.2.3](#)). Partant de ces constats, deux possibilités ont été envisagées :

- mettre en place un deuxième micro-miroir fibré accolé au premier pour former une **cavité annexe** pouvant être excitée à résonance (voir la figure [4.17](#)),
- ou tirer parti des faibles **interférences du laser d'excitation** hors résonance (en dehors de la bande de réflexion des miroirs de Bragg) pour construire un signal d'erreur.

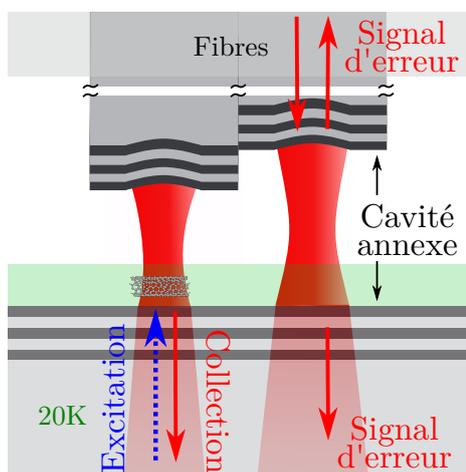


FIGURE 4.17 – Schéma d’une micro-cavité annexe permettant de découpler l’asservissement de la mesure physique. Le signal d’erreur est obtenu en sondant la transmission ou la réflexion de la cavité annexe.

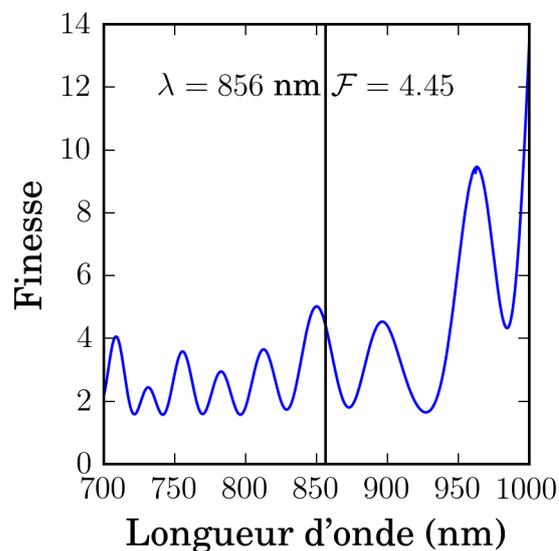


FIGURE 4.18 – Finesse de la micro-cavité fibrée en fonction de la longueur d’onde accessible à l’excitation hors résonance (en dehors de la bande de réflexion des miroirs de Bragg). Sauf mention contraire l’excitation est à 856 nm et correspond à une finesse de 4.45.

L’assemblage de deux fibres à travers une lentille percée (voir partie 5.1.1) semblant délicat, la mise en place d’une cavité annexe n’a pas été notre première approche. Nous avons, au préalable, tenté de stabiliser la micro-cavité en bénéficiant des interférences sur le laser d’excitation de photoluminescence. Le miroir de Bragg est conçu pour réfléchir principalement entre 1250 et 1550 nm mais sa réflexion reste non négligeable en dehors de cette bande de réflexion comme sur la figure 4.18. Ce phénomène engendre des effets de cavité qui peuvent être exploités pour construire un signal d’erreur.

A priori, la stabilisation sur le flanc d’une résonance décrite dans la partie D.2.2 semble plus pertinente dans le cas d’une cavité de basse finesse. La finesse de 4,45 obtenue pour une excitation à 856 nm permet un contraste des interférences de 80%. Cependant, ce type de stabilisation est peu robuste aux fluctuations d’intensités. Or, la déviation standard de l’intensité d’excitation est d’environ 2% (voir la partie D.2.4) et le signal d’erreur est monotone sur $\frac{856}{4} = 214$ nm. Si les fluctuations d’intensité ne sont pas compensées et que le dispositif est initialement centré sur la plage linéaire du signal d’erreur, une variation de 2% correspond à un déplacement d’environ 2 nm soit 40 fois la largeur du pic de transmission (pour le mode 5, à 1310 nm et une finesse de 5000). Ce bruit est comparable voire supérieur aux fluctuations du signal

d'erreur dues aux vibrations, la stabilisation active n'est donc pas possible dans ces conditions.

Ce problème serait résolu par une méthode PDH. Or, cette méthode est particulièrement efficace lorsque la modulation en fréquence Ω est comparable ou supérieure à la largeur du pic de transmission. Dans le cas d'une excitation en dehors de la bande de réflexion du Bragg, la finesse est de l'ordre de l'unité donc $\Delta\nu \approx \frac{c}{2L} \gg \Omega$ ce qui n'est pas favorable. Tant que $\Omega < \Delta\nu_{1310\text{nm}} \ll \Delta\nu_{856\text{nm}}$, l'ordre de grandeur du rapport des amplitudes des signaux PDH est proportionnel au rapport des coefficients F . Ainsi $\frac{s_{1310\text{nm}}}{s_{856\text{nm}}} \sim \left(\frac{F_{1310\text{nm}}}{F_{856\text{nm}}}\right)^2 \approx \left(\frac{5000}{4,45}\right)^2 \sim 10^6$. Cet ordre de grandeur est confirmé par les simulations présentées à la figure 4.19 pour de petites longueurs de cavité. Plus généralement, l'amplitude du signal PDH à 856 nm est au mieux 10^4 fois plus faible hors résonance que dans la bande de réflexion.

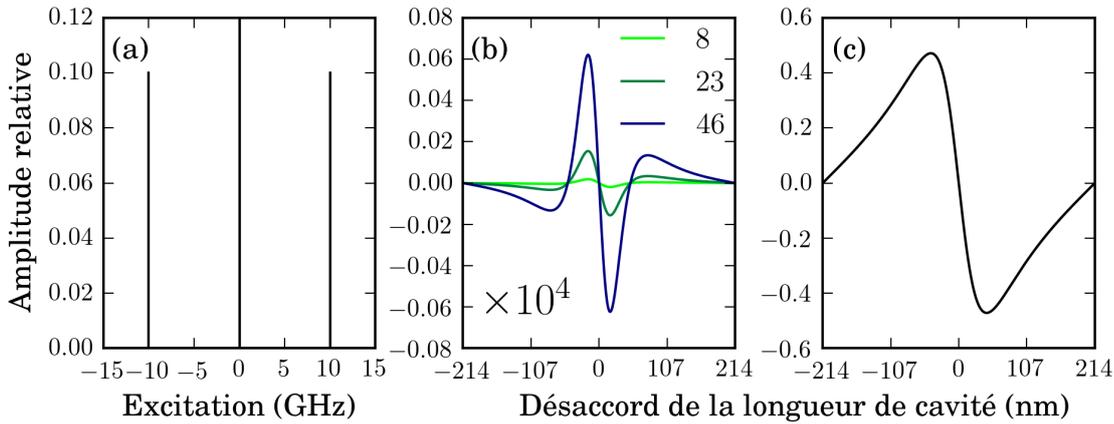


FIGURE 4.19 – **(a)** Simulation de l'intensité normalisée du laser Ti :Sa modulé en phase centré à 1,45 eV (856 nm). Des pics latéraux apparaissent à la fréquence de modulation de 10 GHz. **(b)** Simulation de signaux d'erreur obtenus par la méthode PDH sur une cavité de finesse de 4,45 pour différents modes. Les modes 8, 23 et 46 correspondent grossièrement aux longueurs atteintes pour les modes 5, 15 et 30 résonant à 1310 nm. L'amplitude a été multipliée par 10^4 pour correspondre en ordre de grandeur à celle figure D.25b. **(c)** Partie dispersive du coefficient de réflexion de la cavité.

En outre, les réflexions multiples sur les optiques créent des cavités parasites qui ont une finesse de l'ordre de celle de la cavité à stabiliser (pour un coefficient de réflexion de 4%, la finesse est de 0,7). Une cavité parasite vibrant avec une amplitude du même ordre de grandeur que la micro-cavité fibrée induit un bruit sur le signal d'erreur d'environ $\left(\frac{F_{\text{parasite}}}{F_{\text{micro-cav.}}}\right)^2 = \left(\frac{0,7}{4,45}\right)^2 \approx 2\%$. Étant donné qu'il peut y avoir plusieurs cavités parasites et qu'elles vibrent a priori plus fortement que la micro-cavité fibrée, car aucune précaution n'est prise pour les stabiliser, ce bruit peut devenir facilement significatif. Le phénomène est similaire pour la méthode HC,

la polarisation n'est pas parfaitement contrôlée dans le dispositif et les fluctuations des cavités parasites pourraient prendre le pas sur la micro-cavité à cause de la biréfringence due aux contraintes mécaniques.

Ainsi, aucune des méthodes présentées dans la partie D.2.2 n'est directement applicable. Toutefois, pour être moins sensible aux fluctuations d'intensité tout en s'affranchissant des cavités parasites en amont de la cavité, il est possible d'utiliser une méthode analogue à celle de PDH en modulant non pas la phase du laser mais la longueur de cavité. Le laser est accordé pour être à un maximum de transmission de la cavité et l'intensité transmise est démodulée par une détection synchrone. Le signal d'erreur obtenu est proportionnel à la dérivée du pic de transmission [254]. La modulation de l'intensité est très faible à proximité d'un maximum, elle est en phase avec la modulation sur le flanc croissant du pic de transmission et en opposition de phase sur le flanc décroissant. Le handicap de cette méthode est que, dans le cas d'une stabilisation active parfaite, les fluctuations de la cavité seront toujours limitées par l'amplitude de modulation.

Le dispositif expérimental de rétroaction est schématisé à la figure 4.20.

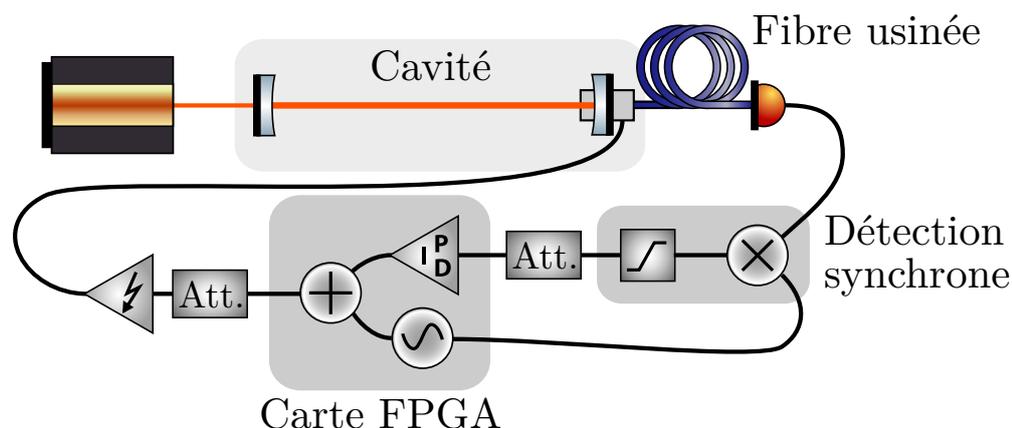


FIGURE 4.20 – Stabilisation active de la micro-cavité fibrée. L'intensité transmise par la cavité est enregistrée en sortie de la fibre usinée par une photodiode. Le signal reçu est démodulé par une détection synchrone puis transmis à la carte FPGA. La carte FPGA fait aussi office d'oscillateur pour la modulation. Des atténuateurs variables (Att.) ont été ajoutés pour adapter la sortie de la détection synchrone à l'entrée de la carte FPGA et la sortie de cette dernière à l'entrée de l'amplificateur haute tension de l'actionneur piézoélectrique.

L'écart $L - L_{\text{cons}}$ à la longueur consigne est la somme d'une modulation $l_{\text{mod}} \sin(2\pi f_{\text{mod}} t)$ et des fluctuations dues aux vibrations δL . La longueur consigne L_{cons} est choisie pour stabiliser la longueur de cavité sur un mode résonant donc $\sin(kL_{\text{cons}}) = 0$. L'intensité transmise par la cavité vaut :

$$I_T = I_0 \frac{1}{1 + F \sin^2(kL)} \approx I_0 \left(1 - F (k(L - L_{\text{cons}}))^2\right) \quad (4.11)$$

Ainsi, après détection synchrone, le signal d'erreur est bien localement proportionnel à δL :

$$s \propto (I_0 F k^2 l_{\text{mod}}) \delta L \quad (4.12)$$

Comme vérification de principe, l'intensité mesurée directement en transmission de la cavité et le signal obtenu après démodulation sont tracés à la figure 4.21 sur la plage stable de la cavité ($\sim 13 \mu\text{m}$). Ces graphiques sont obtenus en juxtaposant plusieurs acquisitions où les pics de transmission en lumière blanche sont observés au spectromètre en balayant la longueur de cavité de façon quasi-statique sur la plage linéaire du positionneur inertiel. La périodicité est bien de $\frac{\lambda}{2} = \frac{856}{2} \text{nm}$ et le bruit du signal démodulé est nettement plus faible (le signal dépend moins des variations d'intensité du laser et des cavités parasites situées en amont de la cavité). Comme attendu, un zéro du signal d'erreur correspond grossièrement à un extremum de la transmission et réciproquement.

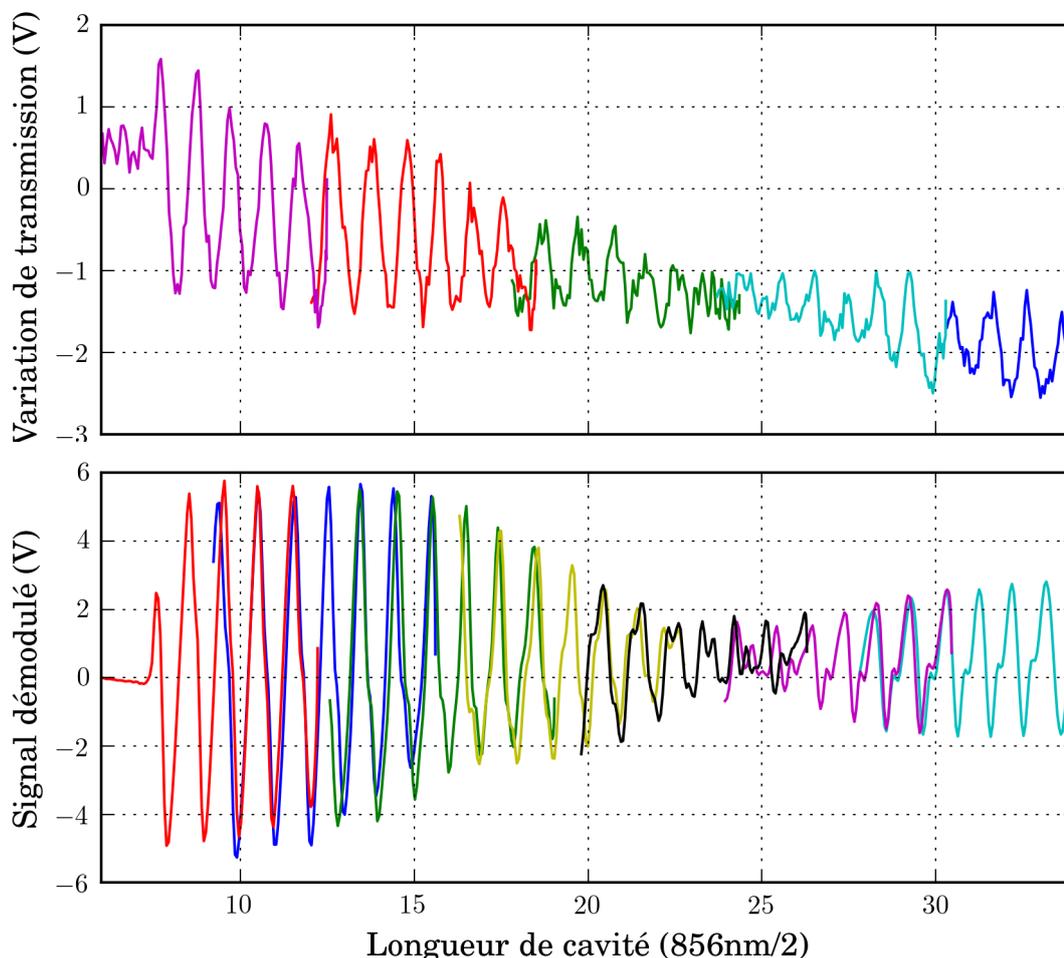


FIGURE 4.21 – **En haut** : Variation de transmission de la cavité à 856 nm en fonction de la longueur de cavité exprimée en unité de $\frac{856}{2}$ nm. **En bas** : Signal d’erreur obtenu par détection synchrone en modulant la cavité en fonction de la même longueur de cavité. Pour les deux graphiques, chaque couleur correspond à un balayage de la longueur de cavité différent (la course linéaire du nano-positionneur inertiel n’est pas suffisante pour balayer toute la plage stable de la cavité en une fois).

La modulation d’amplitude l_{mod} sur la longueur de cavité implique une fluctuation de la longueur d’onde de résonance de $\frac{2l_{\text{mod}}}{p}$. Cette modulation est obtenue en imposant une tension sinusoïdale d’amplitude u_{mod} à l’actionneur piézoélectrique de réponse \mathcal{P} . Ainsi, pour que la modulation ne devienne pas plus gênante que les vibrations, elle est choisie telle que le déplacement du pic de transmission qu’elle induit soit inférieur à sa largeur. Pour cela, il faut que $\frac{2l_{\text{mod}}}{p} = \frac{2u_{\text{mod}}\mathcal{P}(f_{\text{mod}})}{p} < \Delta\lambda = \frac{\lambda}{p\mathcal{F}}$ c’est-à-dire que $u_{\text{mod}} < \frac{\lambda}{2\mathcal{P}(f_{\text{mod}})\mathcal{F}}$. Pour que cette inégalité soit vérifiée, il faut minimiser la tension u_{mod} ou minimiser la réponse de l’actionneur $\mathcal{P}(f_{\text{mod}})$ en jouant sur la fréquence f_{mod} . Or la tension u_{mod} doit être bien résolue par rapport au bruit de la carte FPGA (voir partie 4.3.2.1) et la fréquence f_{mod} doit être suffisamment élevée pour bénéficier

au mieux de la détection synchrone et éviter les problèmes de distorsion abordés en annexe de la partie D.2.3.

En pratique, la fréquence de modulation est choisie telle que $f_{\text{mod}} = 7 \text{ kHz}$. D'après la partie 4.3.2.1, $\mathcal{P}(f_{\text{mod}})$ vaut environ 20 nm/V à 300 K (3 nm/V à 10 K) donc, pour une finesse de 5000 , l'amplitude de modulation doit vérifier $u_{\text{mod}} < 6 \text{ mV}$ à 300 K ($u_{\text{mod}} < 40 \text{ mV}$ à 10 K). De même, pour une finesse de 750 , $u_{\text{mod}} < 42 \text{ mV}$ à 300 K ($u_{\text{mod}} < 280 \text{ mV}$ à 10 K). En pratique la modulation est fixée à 50 mV en sortie de la carte FPGA soit $u_{\text{mod}} = 2 \text{ mV}$ après l'atténuateur ce qui satisfait toutes les inégalités.

Enfin, pour que la rétroaction soit suffisamment rapide, la constante de temps τ du filtre passe-bas de la détection synchrone (24 dB/oct) est choisie à $0,3 \text{ ms}$. Cela correspond à une fréquence de coupure d'environ 530 Hz supérieure à la fréquence de la majeure partie des vibrations. Dans ces conditions, la stabilisation active devrait être efficace. Elle a été testée et optimisée dans la partie suivante.

4.3.3 Mise en œuvre expérimentale

Cette partie décrit l'optimisation de la stabilisation lorsque la boucle de rétroaction est fermée et critique son effet sur la position du pic de cavité.

4.3.3.1 Effet de la rétroaction

La boucle de rétroaction est optimisée à partir des coefficients de Ziegler et Nichols. Le protocole est le suivant :

- Initialement le gain intégral est choisi nul ($K_i = 0$), le gain proportionnel K_p est augmenté progressivement jusqu'à atteindre une oscillation entretenue du signal d'erreur en boucle fermée.
- Pour ce régime critique, le gain proportionnel est noté K_{osc} et la pulsation d'oscillation ω_{osc} . K_{osc} et $f_{\text{osc}} \equiv \frac{\omega_{\text{osc}}}{2\pi}$ vérifient la relation $K_{\text{osc}}\mathcal{S}(f_{\text{osc}})\mathcal{P}(f_{\text{osc}}) \approx 1$.
- Une boucle de rétroaction viable dans la plupart des cas est obtenue pour :

$$K_p = 0,45K_{\text{osc}} \text{ et } K_i = 1,2K_p\omega_{\text{osc}} \quad (4.13)$$

Ce jeu de paramètres n'est pas forcément optimal, mais il donne un point de départ pour une optimisation manuelle [247]. En effet, les paramètres de Ziegler-Nichols créent souvent un dépassement de la valeur consigne, car ils sont optimisés pour rendre la boucle la plus réactive possible (le gain total à ω_{osc} vaut $0,45 \times (1 + 1,2) = 0,99$). Cela rend la stabilisation assez peu robuste aux variations de gain du système. À partir de ce point, K_p et K_i sont modifiés de façon à minimiser l'écart-type du signal d'erreur. En pratique, il est plus facile d'optimiser le jeu de paramètre (K_p, f_i) tel que $K_i = 2\pi f_i K_p$ que (K_p, K_i) . Les paramètres du gain PI sont fixés à :

$$K_p = 0,35K_{\text{osc}} \text{ et } f_i = 1,6f_{\text{osc}} \text{ avec } f_{\text{osc}} \approx 63 \text{ Hz.} \quad (4.14)$$

Le gain total à la fréquence f_{osc} est de 0,91, le système tolère plus les variations de gain qu'avec les coefficients de Ziegler et Nichols tout en restant assez réactif. Ce signal d'erreur et sa transformée de Fourier ont été tracés à la figure 4.22. L'écart-type du signal en boucle fermée est réduit de plus d'un facteur 2 avec les coefficients de l'équation 4.14. Il y a stabilisation du signal d'erreur.

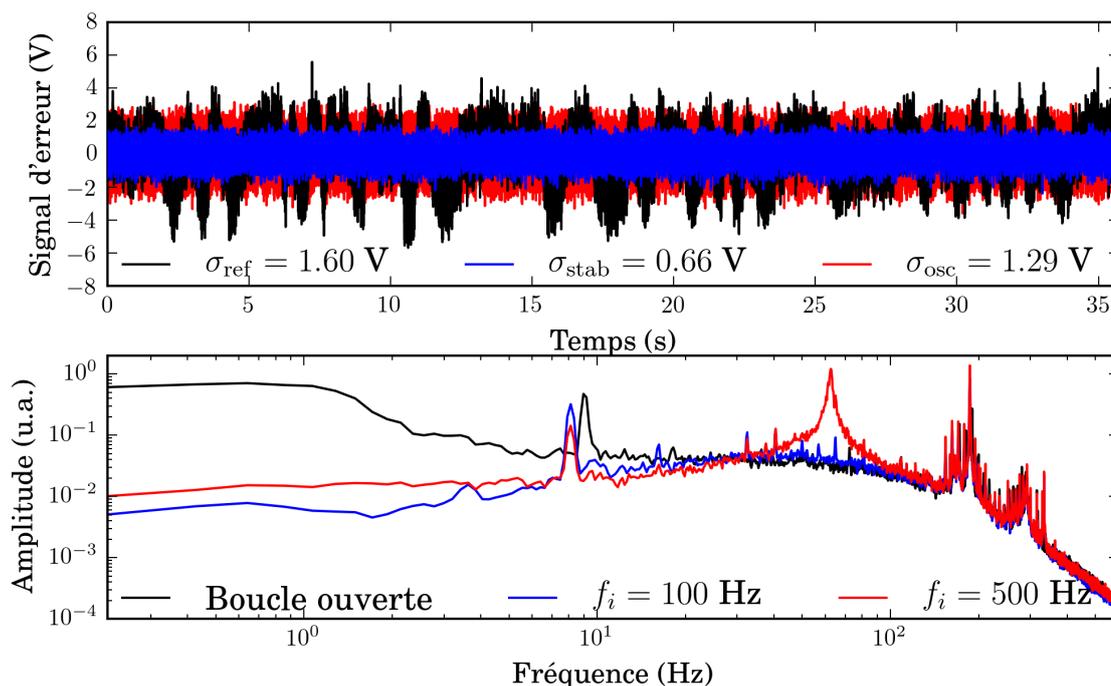


FIGURE 4.22 – Signaux d'erreur et leurs transformées de Fourier dans les cas en boucle ouverte avec un gain unitaire (en noir), en boucle fermée avec $K_p = 0,35K_{osc}$ et $f_i = 1,6f_{osc}$ (en bleu) et $K_p = 0,35K_{osc}$ et $f_i = 8f_{osc}$ (en rouge). Les écarts-types σ de ces signaux sont donnés dans la légende. L'amplitude de la transformée de Fourier du signal dans le cas où $f_i = 1,6f_{osc}$ est toujours inférieure à celle du signal en boucle ouverte. Dans le cas où $f_i = 8f_{osc}$, il y a oscillation à $f_{osc} \approx 63$ Hz.

Cependant, en augmentant le gain le système oscille à 63 Hz, ce qui ne correspond ni à une résonance de l'actionneur (voir figure 4.16) ni à une fréquence de coupure de la boucle de rétroaction (pour ces données, la fréquence de coupure de la détection synchrone est fixée à 159 Hz). L'origine de cette résonance est discutée dans la partie suivante. L'apparition de cette résonance inattendue diminue l'efficacité de la rétroaction. En effet, comme le gain total \mathcal{K} est décroissant avec la fréquence, la rétroaction compense principalement les vibrations plus lentes que 63 Hz soit seulement 50% des vibrations d'après le graphique 4.12.

Le dispositif illustré à la figure 4.23 a été mis en place pour contrôler si la réduction de l'écart-type du signal d'erreur équivaut bien à une réduction de la largeur des pics de transmission de la micro-cavité. Pour ce faire, cette dernière est excitée en

lumière blanche.

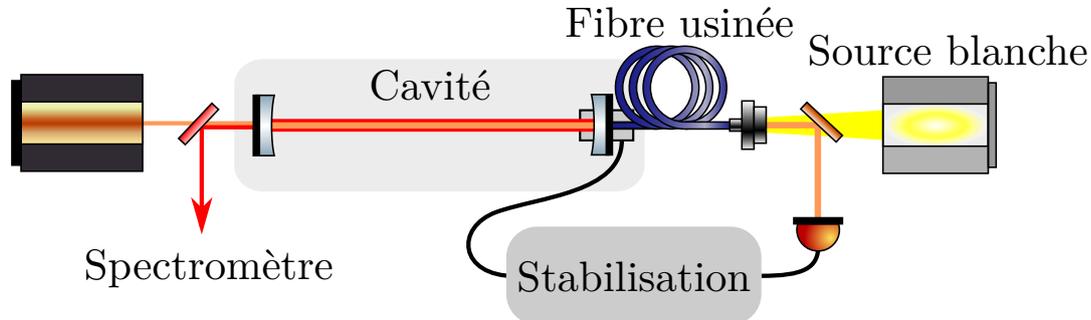


FIGURE 4.23 – Le processus de stabilisation est identique à la figure 4.20 mais deux miroirs dichroïques sont ajoutés afin d’exciter la micro-cavité en lumière blanche et d’analyser son spectre de transmission. Le miroir en sortie de fibre usinée est suffisamment sélectif pour ne pas perturber le signal d’erreur.

Figure 4.24, un balayage de la longueur de cavité stabilisée a été réalisé au moyen du nano-positionneur inertiel. Sur une certaine plage d’accroche (entre 3 et 8 V), la longueur d’onde centrale du pic de transmission reste confinée entre 1287 et 1290 nm. Le mouvement de l’actionneur piézoélectrique s’oppose à celui du nano-positionneur inertiel, il y a bien une rétroaction du système. Pourtant, la longueur d’onde du pic de cavité oscille dans la plage d’accroche.

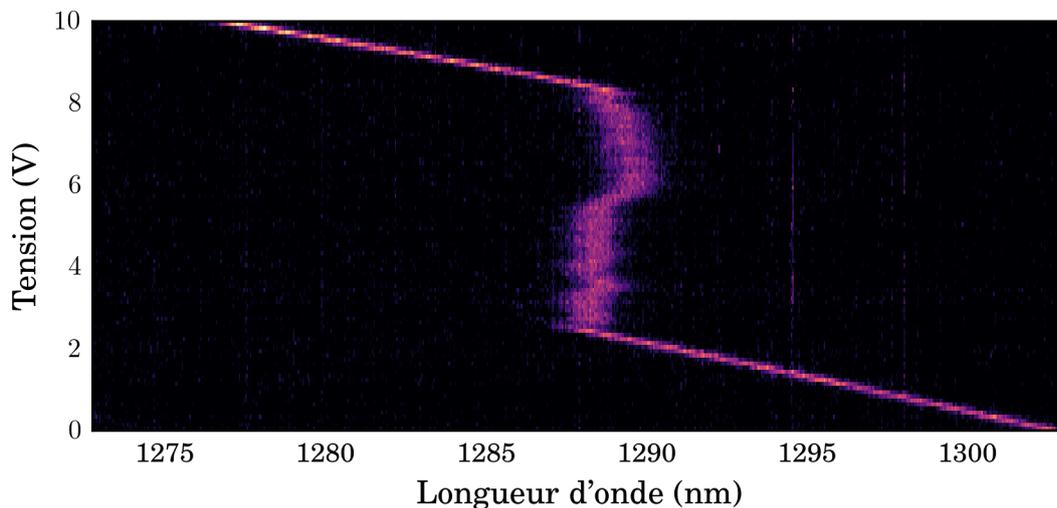


FIGURE 4.24 – Balayage de la longueur de cavité par le nano-positionneur inertiel avec la stabilisation active. L’actionneur piézoélectrique compense partiellement les déplacements du nano-positionneur inertiel sur une certaine plage.

Cette instabilité du système lors d’une rétroaction est d’autant plus manifeste dans le cas d’une trace temporelle présentée à la figure 4.25. La rétroaction empêche la dérive du système mais induit des oscillations de basses fréquences.

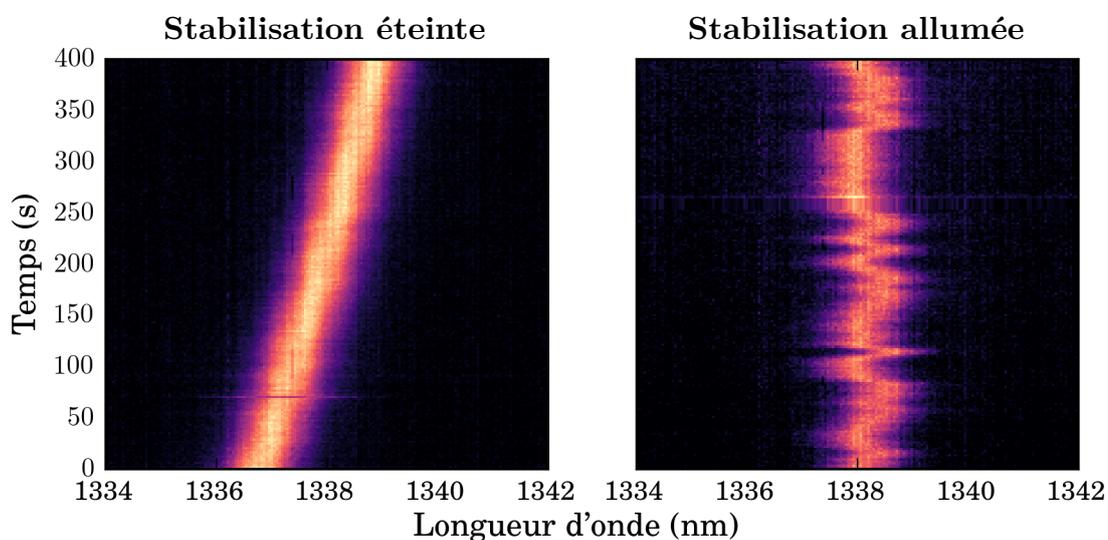


FIGURE 4.25 – **À gauche** : Dérive d'un pic de transmission de la micro-cavité excitée en lumière blanche. **À droite** : Ce même pic une fois la rétroaction activée.

La boucle de rétroaction introduit donc une perturbation tout en diminuant l'écart-type du signal d'erreur. Ainsi, le signal d'erreur construit partie 4.3.2.2 subit des fluctuations non corrélées à la longueur de cavité.

4.3.3.2 Critique du signal d'erreur

Comme abordé dans la partie 4.3.2.2, plus la finesse de la cavité est basse plus le signal d'erreur est sensible aux cavités parasites. Le signal d'erreur hors résonance s_{stab} a donc été comparé à un autre signal obtenu sur le flanc d'un pic de transmission dans la bande de réflexion des miroirs de Bragg (voir la partie D.2.2). Ce signal d'erreur de référence $s_{\text{réf}}$ est plus fiable et ne dépend a priori que des fluctuations de la micro-cavité, mais il ne peut pas être utilisé dans le cadre d'expériences de CNT en cavité. Les deux signaux sont mesurés simultanément comme schématisé sur la figure 4.26. Par la suite, pour distinguer les deux signaux d'erreur, le signal hors résonance exploité pour la stabilisation active est désigné par l'indice 'stab' et le signal de référence par l'indice 'réf'.

Le laser T100S-HP-CL Yenista Optics employé pour le signal de référence est accordable sur la plage 1500-1630 nm. La longueur d'onde $\lambda_{\text{réf}}$ de ce laser est choisie près du bord de la bande de réflexion du miroir de Bragg pour pouvoir adapter la finesse de la cavité à l'amplitude des vibrations (voir la partie 4.1.2.1). Il faut aussi ajuster plus précisément cette longueur d'onde pour que la pente du pic de transmission corresponde avec celle du signal d'erreur hors résonance. Pour le démontrer, un balayage rapide de $\frac{856}{4}$ nm des deux signaux d'erreur est tracé à la figure 4.27. Ici $\lambda_{\text{réf}} = 1595,2$ nm et la finesse choisie pour la micro-cavité est de 82, les vibrations parcourent environ la moitié du flanc du pic. Suivant le même

raisonnement que dans la partie 4.3.2.2, le signal de référence est $\left(\frac{\mathcal{F}_{\text{réf}}}{\mathcal{F}_{\text{stab}}}\right)^2 \approx 340$ fois moins sensible aux cavités parasites.

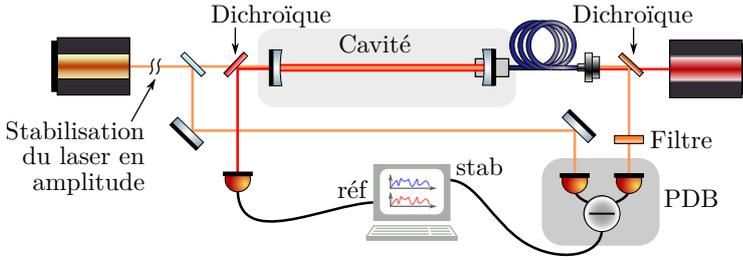


FIGURE 4.26 – Le signal d’erreur hors résonance provient de la différence entre la transmission de la micro-cavité et une référence prélevée en amont. Ce signal de différence est fourni par une photodiode balancée (PDB). Un signal de référence correspondant à la transmission de la micro-cavité pour une finesse plus élevée est enregistré simultanément.

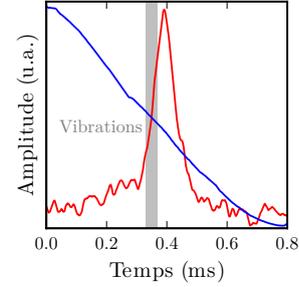


FIGURE 4.27 – Balayage rapide des signaux d’erreurs sur $\frac{856}{4}$ nm. Le signal hors résonance est en bleu et celui en bord de bande en rouge. La zone grisée représente la portion des signaux d’erreur couverte par les vibrations.

Pour simplifier le système, l’acquisition des signaux est faite sans modulation comme décrit à la figure 4.26. Cela nécessite quelques précautions, car ces signaux d’erreur dépendent directement des fluctuations d’intensité des lasers. Le laser en bord de bande est très stable ($\sigma_{\text{réf}} < 0,06\%$), mais le laser de la stabilisation à 856 nm subit de fortes fluctuations⁵ ($\sigma_{\text{stab}} \approx 2\%$). Les fluctuations d’intensité ont donc été compensées lors de la mesure de l’intensité grâce à une photodiode balancée Nirvana 2007 Newport et le laser stabilisé en amplitude (l’écart-type σ_{stab} passe de 2% à 0,11%, voir l’annexe D.2.4). La stabilisation du laser en amplitude a aussi permis de démontrer le bon fonctionnement de la carte FPGA dans le cadre d’une boucle de rétroaction moins complexe.

Pour que le signal d’erreur hors-résonance s_{stab} soit pertinent, il faut qu’il présente les mêmes pics de vibrations que le signal en bord de bande de réflexion $s_{\text{réf}}$ (voir la partie 4.2.2.1) et que, pour ces pics de vibrations, les deux signaux soit en phase (ou en opposition de phase). Ainsi, la corrélation croisée C en fréquence a été calculée pour les comparer :

$$C = \frac{\mathcal{T}_{\mathcal{F}}^* [s_{\text{stab}}] \mathcal{T}_{\mathcal{F}} [s_{\text{réf}}]}{\sqrt{|\mathcal{T}_{\mathcal{F}} [s_{\text{stab}}] \mathcal{T}_{\mathcal{F}} [s_{\text{réf}}]|}} \quad (4.15)$$

où $\mathcal{T}_{\mathcal{F}}^*$ désigne le complexe conjugué de la transformée de Fourier. Si $|C| = 1$, les

5. En grande partie due au couplage dans une fibre optique.

signaux d'erreur sont parfaitement corrélés en amplitude. Il est donc possible de définir une partie corrélée $|C| \mathcal{T}_{\mathcal{F}}[s_{\text{stab}}]$ et une partie non corrélée $(1 - |C|) \mathcal{T}_{\mathcal{F}}[s_{\text{stab}}]$. La partie corrélée reflète la partie du signal d'erreur 'stab' qui est réellement due aux vibrations de la cavité, la partie corrélée provient vraisemblablement de cavités parasites sans rapport avec la micro-cavité fibrée. Elles sont toutes deux tracées sur la figure 4.28. Comme la conversion en nanomètre du signal $s_{\text{réf}}$ est connue (voir partie 4.1.2.1), il est aussi possible de convertir le signal s_{stab} en s'appuyant sur la partie corrélée des deux signaux.

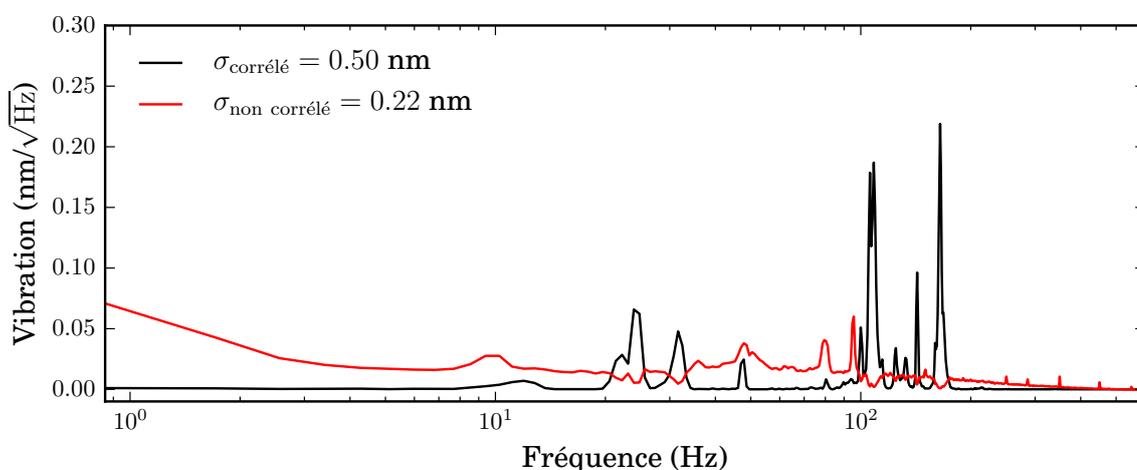


FIGURE 4.28 – Amplitude du signal d'erreur corrélée $|C| \mathcal{T}_{\mathcal{F}}[s_{\text{stab}}]$ aux vibrations de la micro-cavité (en noir) et amplitude non corrélée $(1 - |C|) \mathcal{T}_{\mathcal{F}}[s_{\text{stab}}]$ due à des cavités parasites. Les écart-types sont obtenus en sommant quadratiquement les amplitudes.

Puisque l'écart-type des vibrations mesurées par $s_{\text{réf}}$ vaut $\sigma_{\text{réf}} \approx 0,8 \text{ nm}$ (voir la partie 4.2.2.1), la partie corrélée s_{stab} équivaut à un écart-type de $\sigma_{\text{corr.}} \approx 0,50 \text{ nm}$ et celle non-corrélée à $\sigma_{\text{non corr.}} \approx 0,22 \text{ nm}$. Le signal non corrélé n'a pas de relation de phase avec les vibrations et augmente donc les fluctuations de la longueur de cavité.

En supposant le système de rétroaction idéal à l'exception de l'amplitude du signal d'erreur, l'écart-type des vibrations serait toujours supérieur à :

$$\sigma = \sqrt{(\sigma_{\text{réf}} - \sigma_{\text{corr.}})^2 + \sigma_{\text{non corr.}}^2} \approx 0,37 \text{ nm}.$$

L'amplitude des vibrations ne diminuerait que d'un facteur 2.

En outre, pour que la rétroaction soit efficace, il faut aussi une corrélation en phase. Pour visualiser cette relation de phase, la partie imaginaire $\Im[C]$ est tracée en fonction de la partie réelle $\Re[C]$ à la figure 4.29. Les signaux d'erreur sont globalement en phase pour les fréquences supérieures à 60 Hz et en opposition de phase pour les autres. Dans un cas idéal, les signaux auraient toujours dû être en

opposition de phase car les pentes des flancs des pics de transmission exploités sont opposées (voir la figure 4.27).

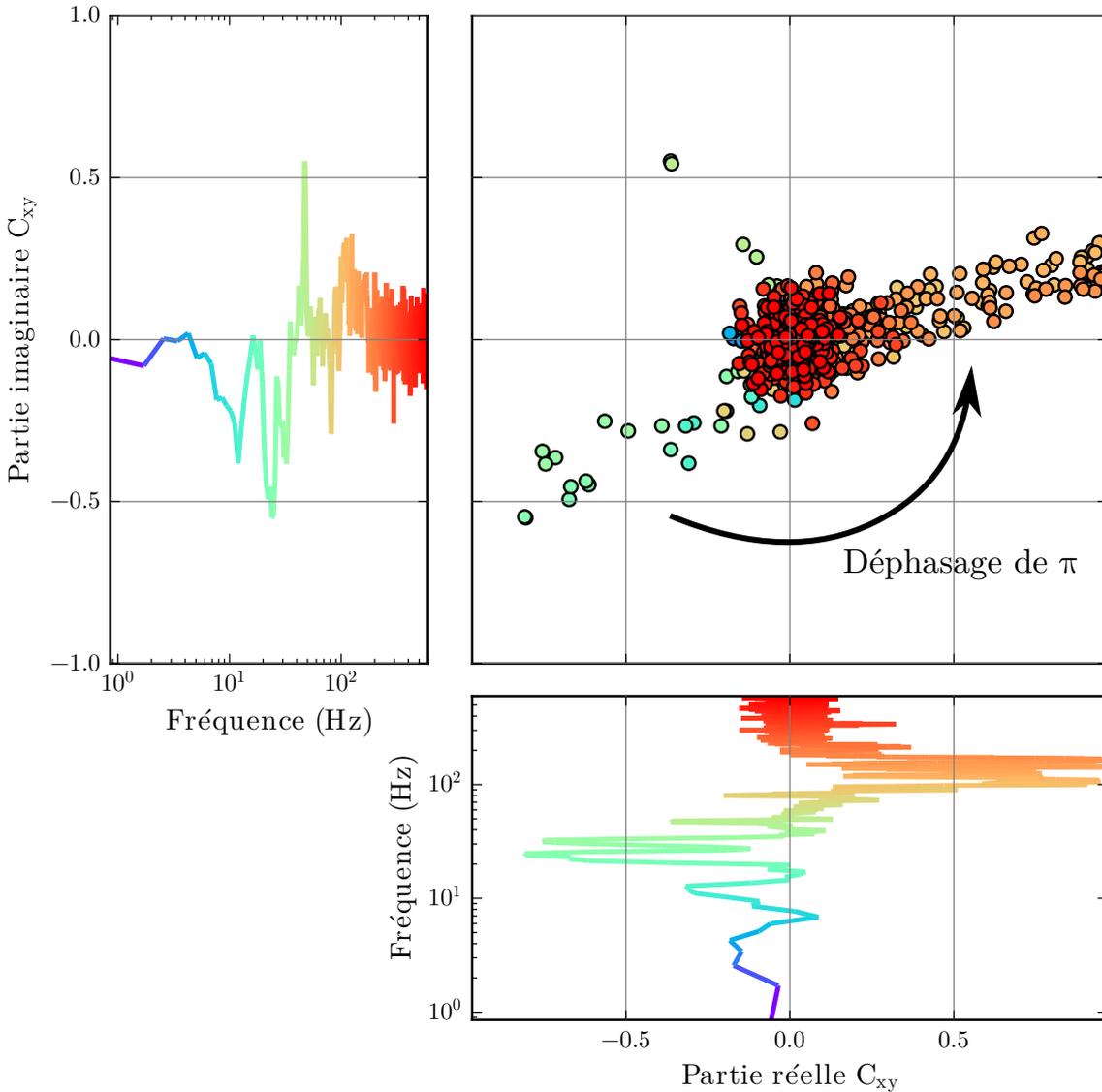


FIGURE 4.29 – **À gauche** : $\Im[C]$ en fonction de la fréquence. **En bas à droite** : $\Re[C]$ en fonction de la fréquence. **En haut à droite** : $\Im[C]$ en fonction de $\Re[C]$. Un saut de phase de π est observé au dessus de 60 Hz. Les quelques points déphasés d'environ $\frac{2\pi}{3}$ proviennent du bruit à 50 Hz car les différents appareils ne sont pas tous branchés sur la même phase du triphasé.

Le déphasage de π transforme la stabilisation du système en amplification à partir de 60 Hz. En effet, le gain est choisi pour que la rétroaction s'oppose à une dérive à basse fréquence. Ainsi, entre 0 et 60 Hz, le signal d'erreur est en phase avec les vibrations, il y a stabilisation. Pour des fréquences supérieures à 60 Hz, le signal

d'erreur est en opposition de phase avec les vibrations, les fluctuations sont amplifiées. L'écart-type du signal corrélé en phase vaut $\sigma_{\text{corr.}}^{<60\text{Hz}} \approx 0,11$ nm et celui en opposition de phase $\sigma_{\text{corr.}}^{>60\text{Hz}} \approx 0,49$ nm.

En prenant en compte cette relation de phase entre les vibrations et le signal corrélé, l'amplitude des vibrations atteindrait au mieux :

$$\sigma = \sqrt{\underbrace{(\sigma_{\text{ref}}^{<60\text{Hz}} - \sigma_{\text{corr.}}^{<60\text{Hz}})^2}_{\text{stabilisation}} + \underbrace{(\sigma_{\text{ref}}^{>60\text{Hz}} + \sigma_{\text{corr.}}^{>60\text{Hz}})^2}_{\text{amplification}} + \sigma_{\text{non corr.}}^2} \approx 1,1 \text{ nm.}$$

Dans ces conditions, la rétroaction augmente les vibrations au lieu de les compenser. La stabilisation des vibrations est négligeable devant le bruit parasitant le signal d'erreur et l'amplification.

Le déphasage à 60 Hz correspond à la résonance mentionnée dans la partie 4.3.3.1 lors de l'optimisation des paramètres de gain de la boucle de rétroaction. Une cause probable de cette résonance visible uniquement en boucle fermée est un problème de phase non minimale. Ce cas de figure est développé dans l'annexe D.2.5. Il peut se résumer simplement par le fait que les vibrations se déroulent sur plus de degrés de liberté que ceux accessibles à la rétroaction (compensation d'un mouvement 2D par un déplacement 1D).

En l'état, la rétroaction augmente les fluctuations de la cavité plus qu'elle ne les compense comme sur la figure 4.25. Ce phénomène est dû à la fois à une partie du signal d'erreur non corrélée et au saut de phase de π causé par le problème de phase non minimale.

4.3.3.3 Processus de stabilisation envisagés

En l'état, la stabilisation active ne permet pas de diminuer la largeur des pics de transmission. Cependant certains leviers pourraient rendre la micro-cavité plus propice à une rétroaction.

Optimiser la transmission du système Comme le montre la partie 4.3.3.2, une part non négligeable des fluctuations du signal d'erreur n'est pas due aux variations de longueur de la cavité.

Deux sources de ces fluctuations ont été identifiées et peuvent être corrigées :

- La sortie du cryostat de la fibre usinée est un coupleur constitué d'un morceau de fibre multimode assez court mal couplé à la fibre de collection. Un effet de cavité parasite peut donc avoir lieu. Les variations d'intensité sont particulièrement importantes en réflexion, c'est pourquoi les signaux d'erreur ont été construits en transmission. Récemment, ce problème a été résolu par la fabrication d'une sortie de fibre par compression sur une virole en PTFE [255].

- La collection du signal d'erreur dépend directement de l'injection du laser hors résonance dans la fibre usinée. Cette injection peut varier si la plateforme bouge relativement à la table optique. Ce problème devrait diminuer avec une des améliorations proposées partie D.1.3 : en baissant le centre de gravité et en augmentant la masse de la plateforme.

Retour à une stabilisation à résonance Une grande partie des difficultés rencontrées viennent de la faible finesse de la micro-cavité hors-résonance. Malgré les contraintes sur l'excitation de l'émetteur, il est possible de retrouver une configuration pour laquelle le signal d'erreur est obtenu à résonance. Jusqu'à présent deux possibilités sont envisagées :

- Si le tube est parfaitement aligné sur le mode TEM_{00} , il est possible d'exploiter les modes TEM_{01} ou TEM_{10} pour le signal d'erreur, car ils présentent un nœud là où le mode TEM_{00} est maximal. Cela demande de bien séparer ces modes spectralement pour ne pas éblouir la caméra ce qui est relativement difficile car ces modes sont proches et la différence de puissance entre l'excitation et l'émission est très marquée. En outre, le recouvrement des modes de cavité avec un nœud au centre et le mode guidé de la fibre est extrêmement faible donc la cavité ne pourrait être sondée qu'en réflexion par l'arrière de l'échantillon.
- La dernière méthode serait la mise en place d'une cavité annexe comme représenté à la figure 4.17. Des avancées ont déjà été faites dans cette direction et de premiers tests seront réalisés à court terme.

Néanmoins, un prérequis pour pouvoir stabiliser le dispositif à résonance est de diminuer les vibrations par stabilisation passive jusqu'à atteindre une amplitude comparable à la largeur du pic de transmission (voir la figure 4.13) et prémunir le système contre les problèmes de phase non minimale.

Phase non minimale et contrôle H_∞ A priori, rigidifier le système et éviter les porte-à-faux comme proposé dans la partie D.1.3 devrait réduire les risques d'apparition de problème de phase non minimale. Cependant, si le problème persiste ou s'il empire à cause de la mise en place d'une cavité annexe (ajout d'une distance entre la mesure et le point à stabiliser, voir la partie D.2.5), il faudra adapter le gain de la carte FPGA. En effet, un gain proportionnel-intégral (et dérivé) ne permet pas d'inverser ce type de fonction de transfert [256]. Toutefois, un filtre à réponse impulsionnelle infinie (RII) permet de construire une fonction de transfert arbitraire à partir de ses pôles et de ses zéros. Un filtre RII limité, implémenté dans la librairie PyRPL [257], ne pourrait pas inverser une réponse complexe comme celle décrite partie 4.3.2.1. Néanmoins, des cas similaires ont déjà été stabilisés à partir de cartes FPGA RedPitaya bien que cela nécessite une reprogrammation du réseau de portes logiques [258, 259].

Conclusion

La stabilisation de la micro-cavité fibrée a réduit l'amplitude des vibrations d'un facteur 3 à température ambiante et d'un facteur 4 à température cryogénique. Ce n'est pas suffisant pour remplir l'objectif fixé dans la partie 4.1.2.2. Toutefois, cette étude identifie les limites du dispositif en terme de propagation des vibrations et de rétroaction. En effet, la fixation de la lentille fibrée en porte-à-faux et le déplacement longitudinal du micro-miroir relativement à la plateforme et non à l'échantillon doivent impérativement être corrigés dans une version ultérieure. En outre, un signal d'erreur plus pertinent pourra être obtenu à l'aide d'une micro-cavité fibrée annexe. Associé à un système plus rigide et au filtrage numérique déjà implémenté, il devrait permettre de bénéficier prochainement d'une stabilisation active performante.

5

NANOTUBES DE CARBONE EN CAVITÉ

Sommaire

5.1	Passer de micro-PL à cavité	173
5.1.1	Principe	173
5.1.1.1	Description du dispositif	173
5.1.1.2	Procédure d'alignement	175
5.1.2	Mise en place	176
5.1.2.1	Perçage des lentilles	176
5.1.2.2	Collage de la fibre usiné	178
5.2	Effets de couplage	179
5.2.1	Balayage de la longueur de cavité	180
5.2.1.1	Accords spatial et spectral	180
5.2.1.2	Comparaison des flux de photons	182
5.2.1.3	Estimation du facteur de Purcell	185
5.2.2	Effet sur l'intégralité du spectre	189
5.2.2.1	Reconstruction du spectre en cavité	189
5.2.2.2	Lien entre l'efficacité et le spectre reconstruit . .	193
5.2.2.3	Estimation du couplage	196

Le chapitre 1 met en évidence l'intérêt des CNT comme émetteurs de photons uniques dans les bandes télécoms mais aussi leur faible rendement quantique. Pour compenser cet inconvénient, le chapitre 3 propose de coupler le CNT à une micro-cavité fibrée pour exalter son émission. Ce chapitre décrit le système expérimental mis en place pour étudier de façon reproductible l'émission en espace libre et celle en cavité et les comparer. Il souligne à quel point la micro-cavité fibrée est adaptée pour accorder l'émetteur spatialement et spectralement avec le mode de cavité.

Pour alterner simplement et rapidement entre la configuration en espace libre et celle en cavité, la lentille de collection de micro-PL a été percée pour accueillir la fibre usinée dont la pointe forme le micro-miroir de la cavité. La première partie de ce chapitre précise les tenants et aboutissants de cette originalité expérimentale.

Le dispositif et sa fabrication avec les étapes de perçage et de collage de la lentille sont d'abord décrits puis, le processus d'alignement des optiques et les contraintes impliquées par la lentille percée et l'emplacement de la micro-cavité sont expliqués.

Pour comparer l'émission du CNT en espace libre avec celle en cavité, deux méthodes ont été employées. D'une part les flux de photons émis sur la ZPL sont comparés pour calculer le facteur de Purcell. D'autres part, le couplage g est estimé en modélisant l'efficacité de la source. Pour s'affranchir des vibrations, cette dernière est déduite du profil d'émission obtenu en balayant rapidement la longueur de cavité. Ces deux méthodes complémentaires permettent de mettre en relief les effets de CQED sur un CNT individuel en cavité.

5.1 Passer de micro-PL à cavité

Le dispositif a été conçu pour passer facilement de la collection de la photoluminescence en espace libre à celle en cavité sur un même CNT. Pour ce faire, il faut remplacer la lentille de collection par le micro-miroir fibré. Or, les déplacements de quelques millimètres sont difficilement reproductibles au micromètre près à température cryogénique. Ainsi, pour minimiser ces déplacements, la lentille est percée afin d'accueillir la fibre usinée. D'abord le principe du système est résumé puis, les points clefs de sa procédure d'alignement sont détaillés.

5.1.1 Principe

Cette partie décrit le dispositif de lentille percée et les étapes suivies pour choisir un CNT et le coupler à la cavité.

5.1.1.1 Description du dispositif

Les configurations du dispositifs « en espace libre » et « en cavité » sont représentées à la figure 5.1. Maintenir la fibre usinée dans la lentille percée permet de s'affranchir des déplacements latéraux (selon x ou y) pour passer d'une configuration à l'autre. L'émetteur est mis en cavité en approchant la lentille percée de l'échantillon jusqu'à ce que le micro-miroir soit presque à son contact.

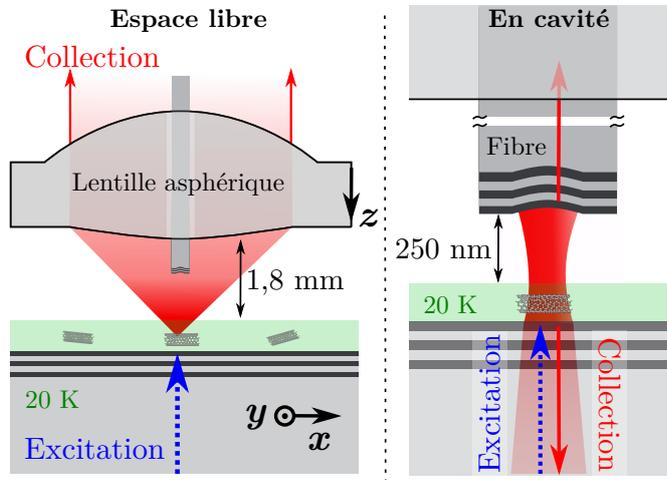


FIGURE 5.1 – Schéma de la photoluminescence d'un même nanotube de carbone collectée en espace libre ou en cavité. Dans les deux cas, l'excitation est identique et passe par l'arrière de l'échantillon. En espace libre la photoluminescence est collectée via une lentille asphérique percée pour accueillir la fibre usinée. En cavité, la photoluminescence est soit collectée par la fibre usinée, soit par l'arrière du miroir plan. Adapté de [40].

Percer la lentille prive la collection de l'angle solide schématisé à la figure 5.2. Compte-tenu du diamètre D_{trou} du trou et de la grande ouverture numérique de la lentille percée, ces pertes sont négligeables. Le rendement de collection de la lentille pour un faisceau gaussien de largeur w s'écrit :

$$\eta_c = \exp\left(-2\left(\frac{D_{\text{trou}}}{2w}\right)^2\right) \quad (5.1)$$

Pour un faisceau gaussien mesurant un diamètre de 3 mm (valeur typique pour l'expérience), soit la moitié de celui de la pupille d'entrée de la lentille et un trou de $330 \mu\text{m}$, ce rendement vaut 0,976.

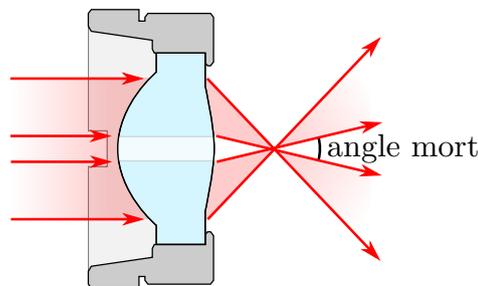


FIGURE 5.2 – Schéma de l'angle mort dû au trou dans la lentille asphérique.

Le diagramme de rayonnement émis par les CNT étant complexe, les pertes induites par le trou sont légèrement différentes de la formule 5.1. Toutefois, des

simulations [40] montrent qu'elles restent inférieures¹ à 2%. L'efficacité de la collection et la prise en compte du diagramme de rayonnement sont abordées plus en détails dans la section 5.2.1.2. Bien que le trou ne soit pas problématique pour le rendement de collection, il crée des difficultés lors de l'alignement (voir l'annexe E).

5.1.1.2 Procédure d'alignement

En pratique ce dispositif est conçu pour passer facilement de la configuration « espace libre » à « cavité » pour plusieurs CNT à la suite en déplaçant simplement l'échantillon. Bien que le dispositif dans l'enceinte du cryostat ait déjà été détaillé dans le chapitre 4, un rappel est donné figure 5.3 pour faciliter la compréhension de la procédure d'alignement.

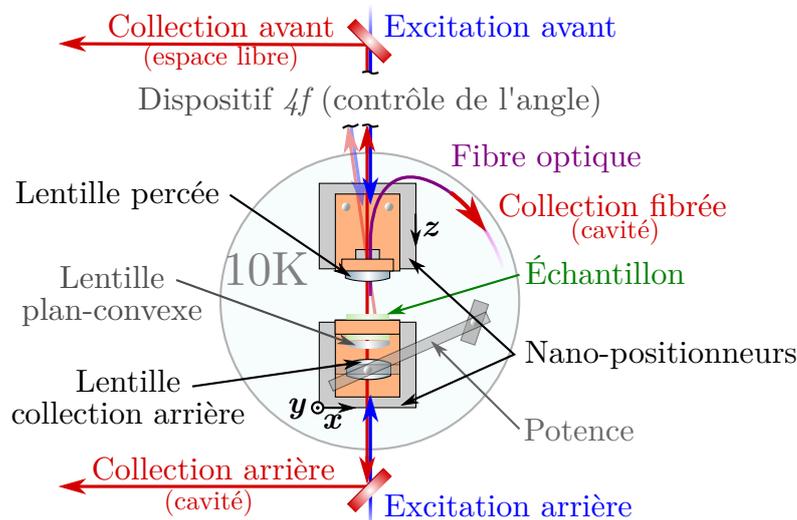


FIGURE 5.3 – Résumé du dispositif permettant de passer facilement de l'observation de la photoluminescence en espace libre à celle en cavité. La lentille percée est translatée selon l'axe optique (z) tandis que l'échantillon est déplacé orthogonalement (x et y). En espace libre, les CNT sont excités par l'avant ou par l'arrière et leur photoluminescence est collectée par l'avant. L'angle d'excitation et de collection par l'avant est contrôlé par le dispositif $4f$ (voir l'annexe A.2). Mettre un émetteur en cavité revient à approcher la lentille percée de l'échantillon jusqu'à ce que le micro-miroir soit presque au contact. Dans cette configuration, seule l'excitation arrière est possible et la collection passe soit par l'arrière de l'échantillon soit par la fibre.

Puisque seul l'échantillon est amené à se déplacer en x ou en y , la cavité se referme toujours au même endroit par rapport à la table optique. Pour repérer l'endroit où se referme la cavité sur l'échantillon, la tache d'excitation arrière sur l'échantillon est

1. L'émission dipolaire des CNT est plus divergente qu'un faisceau gaussien, donc l'intensité cachée par le trou est moins importante.

utilisée. Pour cela, l'excitation arrière est alignée de façon à maximiser sa transmission dans la fibre usinée en configuration « cavité ». Cela fait, il suffit de suivre les étapes suivantes pour étudier un CNT en cavité :

1. Un CNT est repéré en « espace libre » avec l'excitation avant grâce à un balayage de l'échantillon réalisé à l'aide du miroir contrôlé (dispositif 4*f*, voir l'annexe A.2).
2. Il est amené sur la tache d'excitation arrière en déplaçant l'échantillon. Puis, son émission est étudiée sous excitation arrière ce qui fournit une référence en espace libre.
3. Puisque la tache d'excitation arrière manifeste la position où se referme la cavité, pour refermer cette dernière sur le CNT, il suffit d'approcher la lentille percée. En pratique, une fois la cavité proche du contact et à résonance avec l'émetteur, un signal de PL en cavité peut être observé. Ce signal est maximisé en déplaçant légèrement l'échantillon selon la méthode décrite dans la partie 5.2.1.1 avant que l'émission du CNT ne puisse être étudiée.

Une fois le dispositif aligné, passer d'une configuration à l'autre est très rapide et revient simplement à déplacer la lentille percée d'environ un millimètre. Toutefois, l'absence de degré de liberté sur la position où se referme la cavité par rapport à la table optique et l'utilisation d'une lentille percée et non achromatique pose des difficultés lors des réglages préliminaires détaillés dans l'annexe E. En outre, la mise en place de ce dispositif reste délicate comme expliqué dans la partie suivante.

5.1.2 Mise en place du dispositif

Ce montage repose sur le fait de pouvoir percer un trou de très faible diamètre dans une lentille millimétrique puis, d'y faire glisser une fibre usinée afin de la coller sans endommager le micro-miroir à son extrémité. Ces deux étapes sont assez laborieuses et méritent d'être détaillées.

5.1.2.1 Perçage des lentilles

Percer des trous de quelques centaines de μm dans une lentille asphérique C330TMD-C Thorlabs² sans les endommager demande un grand savoir-faire. Les lentilles ont pu être percées à la micro-fraiseuse dans notre laboratoire grâce à Arnaud Leclercq et Nabil Garroum (bureau d'étude de l'ENS). Dans le cadre de cette thèse, deux protocoles ont été mis en place et sont résumés à la figure 5.4 :

- Pour des trous de faibles diamètres (250 à 280 μm) des micro-forets diamantés MCDU10-11 UKAM³ sont utilisés en perçage-débouillage. Le foret s'approche

2. Moulée en verre D-ZK3.

3. Ce fournisseur est à éviter si les micro-forets diamantés ne sont plus en monopole.

de la pièce, perce une certaine profondeur puis se retire. Cela laisse le temps aux débris d'être évacués par le flux d'eau. Le foret arrive orthogonalement à la surface et a tendance à glisser sur la lentille convexe en début de perçage. Ce phénomène entraîne une imprécision de centrage de l'ordre de $50\ \mu\text{m}$ voire la casse de la lentille ou du foret. En moyenne, un foret perce deux lentilles avant de casser. Il est possible de diminuer ce problème en amorçant le perçage à la fraise.

- Pour des trous de diamètres supérieurs, une fraise diamantée Graph'X 851-DG 0,3×2,5 Magafor. peut suffire au perçage. Contrairement au foret, la fraise descend en suivant un chemin hélicoïdal et attaque le trou quasiment parallèlement à la surface. Cela améliore nettement le centrage et, pour l'instant, 5 lentilles ont été percées sans que la fraise ne casse. Toutefois, dans ce cas, la taille du trou est limitée non seulement pas le diamètre de la fraise mais aussi par celui de l'hélice (ici $30\ \mu\text{m}$). Pour l'instant, les trous réalisés de cette manière atteignent $330\ \mu\text{m}$ de diamètre.

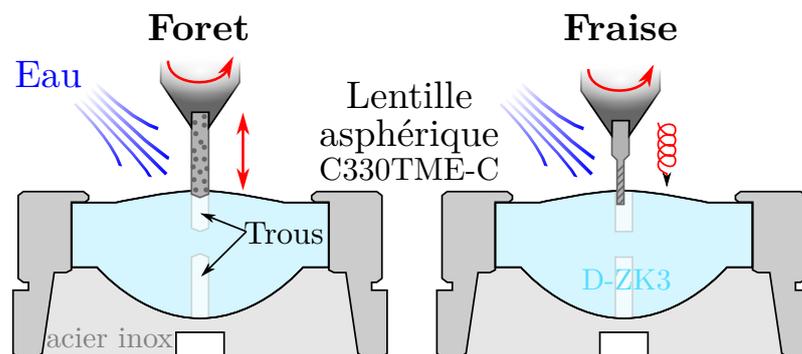


FIGURE 5.4 – Schéma des deux protocoles de perçage des lentilles asphériques.

Dans les deux protocoles, pour éviter la formation d'un cratère en débouchant et à cause de la longueur limitée de l'outil, le perçage est réalisé en deux fois (des deux côtés de la lentille). Ces deux étapes obligent un positionnement très précis du trou.

Le revêtement de la fibre a un diamètre de $165 \pm 10\ \mu\text{m}$ donc, pour les trous de $250\ \mu\text{m}$ de diamètre, la marche de manœuvre de $75\ \mu\text{m}$ est proche de l'erreur typique de centrage : les trous peuvent ne pas se superposer suffisamment pour laisser passer la fibre.

Les paramètres d'usinage sont donnés dans le tableau suivant :

5.1. PASSER DE MICRO-PL À CAVITÉ

	Rotation	Déplacement	Perçage par cycle
Foret	20 000 tr/min	2 mm/min	10 μm
Fraise	30 000 tr/min	3 mm/min	20 μm

TABLE 5.1 – Paramètres d’usinage sur la micro-fraiseuse. Un cycle correspond à un aller-retour (perçage-déburrage) pour le foret et à un pas du chemin hélicoïdal pour la fraise.

5.1.2.2 Collage de la fibre usiné

Une fois le trou percé, la fibre optique est glissée dans la lentille par le côté non usiné jusqu’à dépasser seulement de quelques millimètres. Ensuite, elle est maintenue dans le mandrin visible à la figure 5.5 pour aligner sa position parallèlement à l’axe optique de la lentille.

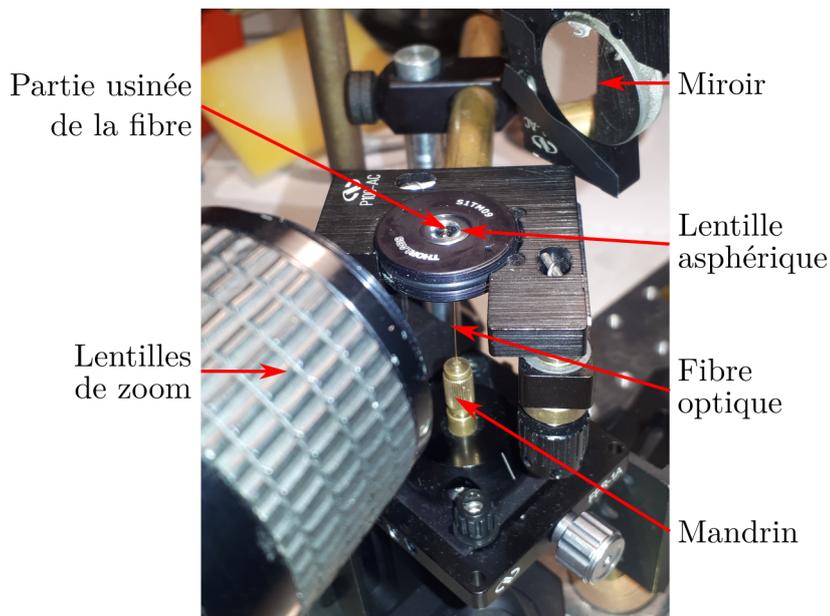


FIGURE 5.5 – La fibre optique est glissée par la partie non usinée à travers la lentille percée et un mandrin. L’angle de la fibre par rapport à l’axe optique de la lentille est ajusté via le support de cette dernière. Quant à la position de la fibre, elle est contrôlée en déplaçant le mandrin. Le dispositif de zoom employé pour visualiser la fibre dans l’enceinte du cryostat est réutilisé pour superviser le dépôt de la colle.

De la colle réticulant sous ultra-violets OP-4-20641 Dymax est déposée sur la fibre au dessus du trou. Le processus est détaillé à la figure 5.6. La fibre est tirée précautionneusement pour permettre à la goutte de colle d’être aspirée par capillarité dans le trou puis remise en place. Ce processus est répété jusqu’à combler le pourtour de la fibre de colle.

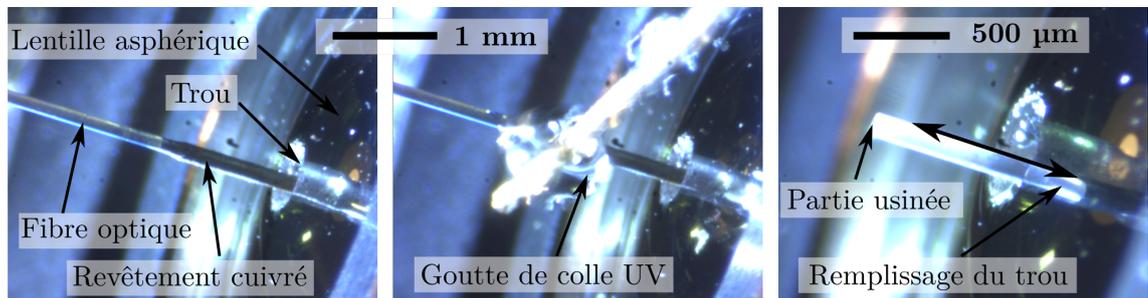


FIGURE 5.6 – Zooms de la fibre optique dans le trou de la lentille percée. **À gauche** : La fibre est glissée dans la lentille et dépasse de quelques mm. **Au milieu** : Une goutte de colle est déposée sur la fibre loin de la partie usinée. **À droite** : La goutte est amenée dans le trou en descendant précautionneusement la fibre. Puis la fibre est remise en place.

Enfin, le micro-miroir à l'extrémité de la fibre est placé à une distance comprise entre 0,5 et 1 mm de la surface de la lentille. La distance de travail de cette dernière étant de 1,8 mm, cela laisse un déplacement de 0,8 à 1,3 mm pour passer de l'espace libre à la cavité. Le point faible de la fibre usinée se situe là où s'arrête le revêtement cuivré (voir figure 5.6). Il faut veiller à ce que cette partie soit protégée à l'intérieur de la lentille ou au moins enduite de colle. La colle est solidifiée en l'exposant pendant quelques dizaines de secondes à une lampe ultra-violette.

L'extrémité libre de la fibre est soudée à une fibre acrylate adaptée ou directement collée dans un connecteur passer le vide du cryostat. Dans le cas du raccord par soudure, les pertes sont négligeables ($<0,03$ dB).

Une fois la lentille percée fixée dans le cryostat face à l'échantillon, il est possible de descendre la plateforme à température cryogénique pour étudier la PL des CNT en espace libre et en cavité selon la procédure résumée dans la partie 5.1.1.2.

5.2 Effets de couplage

Pour observer la photoluminescence des CNT en cavité, le micro-miroir est approché à proximité du contact de l'échantillon. Une fois les accords spatial et spectral optimisés en fonction de l'émetteur, la photoluminescence en cavité est collectée par l'arrière de l'échantillon ou par la fibre usinée. Pour comparer quantitativement à l'émission en espace libre, il est nécessaire de reconstruire le spectre en cavité en s'affranchissant des vibrations. Cette méthode permet d'estimer l'effet Purcell en fonction du mode de cavité et d'appréhender l'effet de couplage sur l'ensemble du spectre d'émission.

5.2.1 Balayage de la longueur de cavité

Pour maximiser l'intensité collectée, la longueur de cavité est balayée sur une large plage de façon à identifier les résonances avec l'émetteur. Cela permet dans un premier temps d'accorder la cavité à l'émetteur puis de comparer les différents modes de collection.

5.2.1.1 Accords spatial et spectral

Pour balayer la cavité, le nano-positionneur inertiel supportant la lentille fibrée est utilisé en régime linéaire. La longueur de cavité diminue proportionnellement à la tension imposée aux bornes du nano-positionneur. Lorsque la cavité vient d'être refermée, les spectres de photoluminescence acquis en fonction de la longueur de cavité sont comparables à ceux présentés à gauche de la figure 5.7. L'accord spectral apparaît clairement lorsque la longueur de cavité est résonante avec la ZPL (à environ 1305 nm dans la figure 5.7). Toutefois, du fait de l'incertitude sur la position où se referme la cavité, l'émetteur n'est jamais parfaitement centré initialement avec la cavité. L'accord spatial est optimisé ensuite en maximisant l'intensité de PL sur le mode TEM_{00} (pour *Transverse ElectroMagnetic mode*) en décalant l'échantillon de quelques μm . L'alignement est considéré acceptable lorsque l'intensité sur le mode TEM_{00} est au moins 10 fois plus élevée que sur les autres modes. Quand l'alignement est correct, l'intensité de PL doit être faible dans les modes TEM_{01} et 10 car ils ont un nœud au centre de leur distribution spatiale.

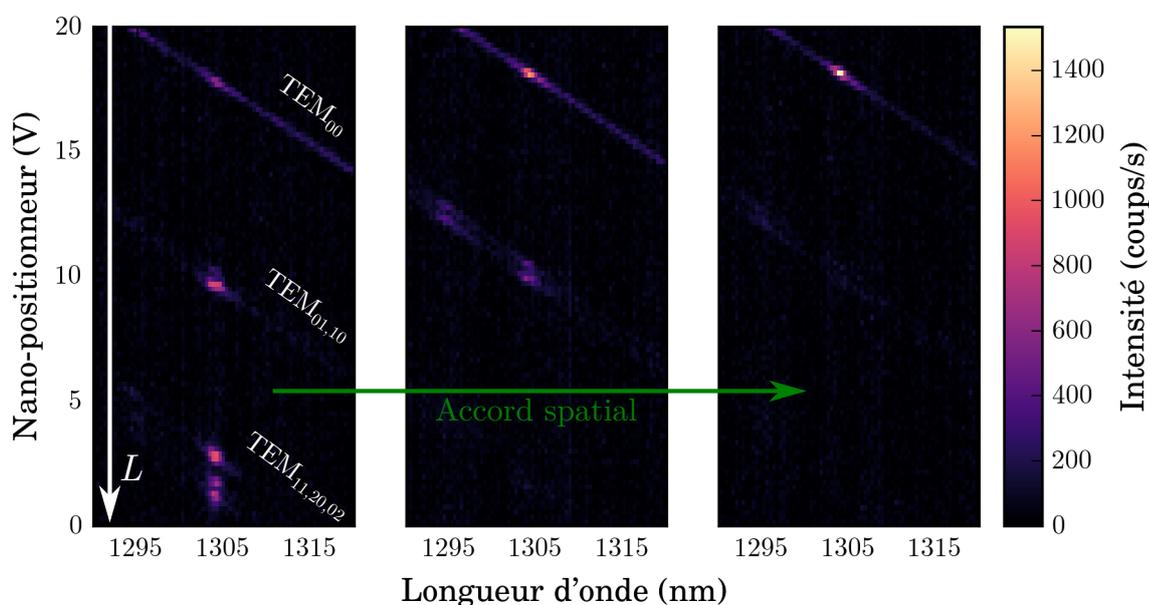


FIGURE 5.7 – Spectres d'émission d'un CNT en fonction de la longueur de cavité. Déplacer de quelques μm l'échantillon suffit pour réaliser l'accord spatial entre l'émetteur et la cavité et maximiser l'émission dans le mode TEM_{00} .

Une fois l'émetteur accordé au mieux à la cavité, il est possible de forcer l'émission du CNT sur différentes parties du spectre comme sur la figure 5.8 où la cavité est accordée sur la PSB rouge. En comparant les flux des photons émis, l'intensité de la PSB en cavité atteint plus de la moitié de l'intensité de la ZPL en espace libre.

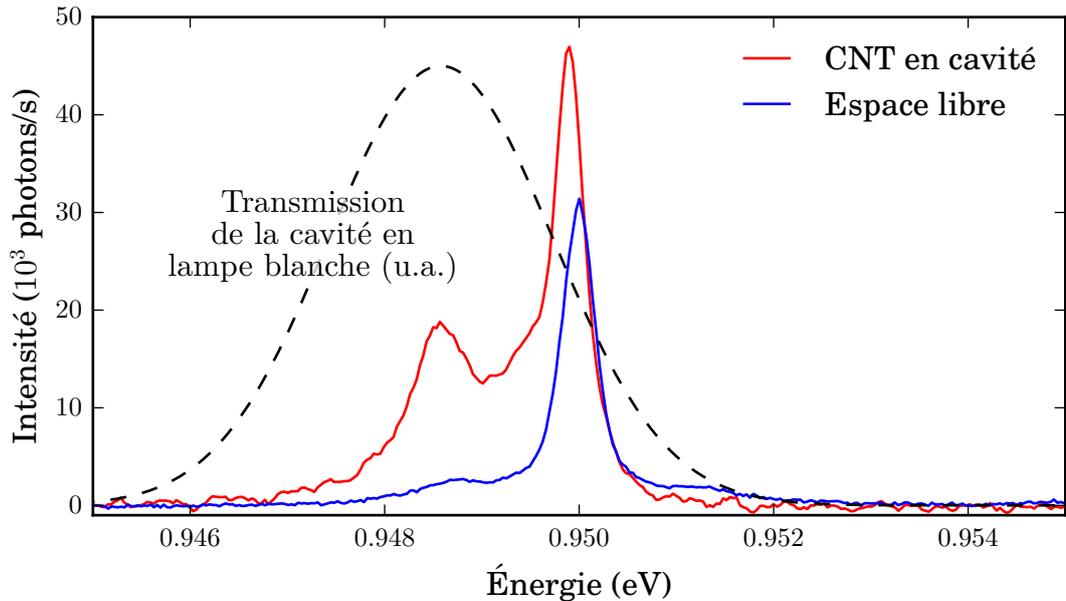


FIGURE 5.8 – Spectres de PL du même CNT en espace libre (ligne bleue) et avec la cavité accordée sur la PSB rouge (ligne rouge). La ligne en pointillés gris indique le spectre de transmission en lumière blanche de la cavité élargi à cause des vibrations.

Dans la version antérieure à ce dispositif [40], le facteur de qualité de la cavité était 8 fois plus élevé. L'émission de la PSB en cavité était bien séparée de celle de la ZPL (voir schéma 5.9). Ainsi, l'émission de photons uniques a pu être vérifiée pour différents désaccords δ entre la cavité et la ZPL du CNT en cavité pour une émission émettant autour de 900 nm. Les données d'auto-corrélation d'intensité obtenue par une expérience HBT (voir la partie 1.3.1) sont présentées sur la figure 5.9. L'exaltation de l'émission sur une large plage spectrale crée une source de photons uniques accordable sur plus d'un terahertz à partir d'un CNT individuel.

En l'absence de capteurs adéquats dans les bandes télécoms, ces mesures n'ont pas pu être reproduites lors de cette thèse. Toutefois, l'équipe a fait récemment l'acquisition de détecteurs supraconducteurs qui pourront confirmer le dégroupement de photons lors d'expériences ultérieures.

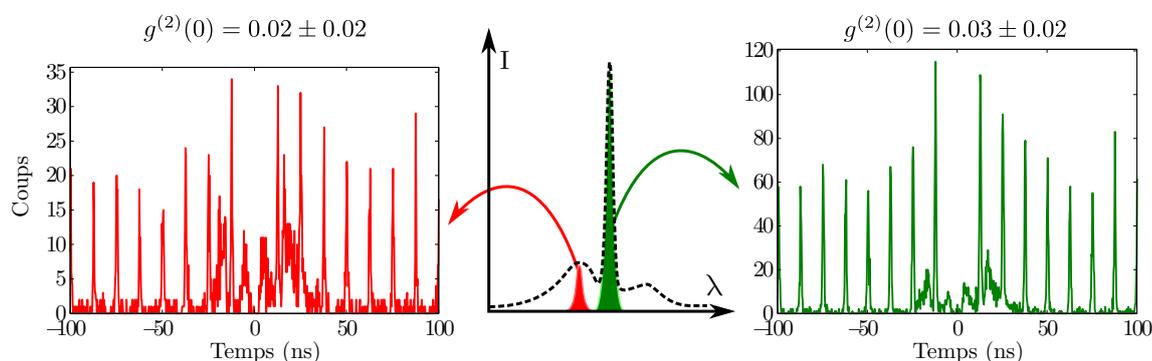


FIGURE 5.9 – Auto-corrélation de l’intensité d’émission d’un CNT couplé à une micro-cavité fibrée mesurée dans un dispositif de type Hanbury Brown et Twiss sous excitation pulsée. Les données de gauche correspondent à la cavité résonante avec la PSB rouge et celle de droite avec la ZPL. L’absence de pics à délai nul prouve l’émission de photons uniques. Le signal entre le premier et le deuxième pic provient d’un artefact de mesure. Données tirées de [37].

Pour quantifier l’influence de la micro-cavité sur le CNT, il faut évaluer le facteur de Purcell comme défini dans le chapitre 3. Ce facteur peut être calculé par le rapport de l’intensité d’émission en cavité par celui en espace libre ou le rapport de temps de vie. Comme mentionné précédemment, aucun compteur de photons rapide n’était disponible durant cette thèse, les temps de vie des émetteurs n’ont donc pas pu être mesurés. Ainsi, le facteur de Purcell a été estimé dans la partie suivante par comparaison des flux de photons.

5.2.1.2 Comparaison des flux de photons

Pour comparer les intensités d’émission en espace libre et en cavité, il faut d’abord estimer les rendements de collection. De plus, une augmentation de la collection en cavité est aussi due à une meilleure directionnalité de l’émission : le rendement de collection doit prendre en compte le diagramme d’émission du CNT. En espace libre, une simulation tirée de [37] tracée à la figure 5.10 montre que seulement 60% de l’intensité est émise en direction de la lentille percée (lobe bleu foncé) tandis que 40% est perdue dans le substrat (lobes bleu clair). En prenant en compte l’ouverture numérique de la lentille percée, entre 15 et 25% de l’intensité est collectée en fonction de la position du CNT. En effet, plus le CNT est proche de la surface du miroir diélectrique, plus la collection sera élevée. Seuls les CNT les plus intenses sont sélectionnés en espace libre, leur collection est donc a priori plus proche de 25% que de 15%. Toutefois, la valeur moyenne de 20% est retenue pour ne pas sous-estimer la collection et, par la suite, surestimer le facteur de Purcell. La simulation du rayonnement du CNT sur substrat a aussi permis de conclure que la présence du miroir de Bragg ne modifiait pas significativement le temps de vie de l’émetteur. L’émission du CNT hors cavité est bien pertinente comme référence d’émission en espace libre.

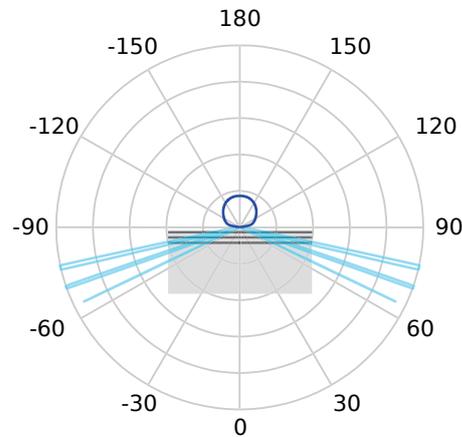


FIGURE 5.10 – Calcul du diagramme de rayonnement d'un CNT placé à 20 nm de la surface d'un miroir diélectrique. Le lobe bleu foncé correspond à la partie de l'émission pouvant être collectée et les lobes bleu clair, à la partie perdue dans le substrat. Tiré de [37].

Pour ce qui est de la collection en cavité, elle est commentée dans l'annexe C.3.1. L'extraction par l'arrière du substrat est de l'ordre de 25% et celle par la fibre de 13%. L'incertitude principale sur l'influence de la cavité provient de l'accord spatial. Même si la position du CNT a été optimisée orthogonalement à l'axe de la cavité, il n'est pas possible de la modifier longitudinalement. La position du CNT par rapport à un ventre de champ dépend de sa profondeur dans la matrice de PS. Toutefois, comme expliqué ci-dessus, les CNT sélectionnés en espace libre ont tendance à être proches de la surface du miroir de Bragg et donc être à proximité d'un ventre de champ en cavité. En outre, l'estimation du facteur de Purcell par un rapport de flux de photons n'est que peu affectée par un mauvais positionnement longitudinal du CNT. En effet, le facteur correctif sur l'intensité d'émission en espace libre et en cavité est similaire.

Pour compléter ces estimations, les différents rendement de collection des chemins optiques du dispositif ont été mesurés et sont résumés dans le tableau 5.2. Les mesures de transmission sont réalisées à l'aide de la diode laser à 1310 nm et d'une photodiode InGaAs à gain réglable⁴.

4. Diode laser LP1310-SAD2 et photodiode PDA10CS-EC Thorlabs.

TABLE 5.2 – Rendements de collection du dispositif. Les valeurs présentées ici sont issues de mesures exceptée la ligne « Extraction » correspondant à l'estimation de la collection du diagramme de rayonnement par la lentille percée en espace libre et à celle du mode de cavité par l'arrière de l'échantillon et guidé dans la fibre optique (voir l'annexe C.3).

	Espace libre	Cavité (coll. arrière)	Cavité (coll. fibre)
Extraction (estimation)	0,20±0,05	0,25±0,05	0,13±0,03
Séparatrice	0,60±0,02	0,63±0,02	-
Autres optiques	0,65±0,01	0,74±0,01	0,94±0,01
Spectromètre	0,56±0,02	0,56±0,02	0,56±0,02
Total	0,044±0,011	0,063±0,013	0,068±0,016
Total/Esp. libre	-	1,4±0,5	1,5±0,5

Les mesures sont relativement proches des valeurs attendues. Pour le spectromètre, ce rendement suppose un coefficient de réflexion des réseaux échelle inférieur à 77%. Dans les échelles d'intensité des graphiques présentés dans cette thèse, 1 coup équivaut à 16 à 17 photons en entrée du spectromètre. Pour les autres optiques, les rendements sont cohérents avec leurs coefficients de transmissions précisés dans le tableau 5.3.

Par exemple, la collection en espace libre comprend 8 miroirs, 3 lentilles (dont la lentille percée) et une fenêtre du cryostat. Les lentilles présentent deux dioptrés anti-réflexion (AR) et la fenêtre du cryostat, deux dioptrés sans revêtement. Une estimation du rendement du chemin optique est donc $0,979^8 \times 0,983^6 \times 0,967^2 \times 0,98 \approx 0,70$.

TABLE 5.3 – Coefficients de transmission en intensité des différentes optiques utilisées (spécifiés par le constructeur ou estimé dans le cas de la lentille percée). Le sigle AR désigne un revêtement anti-réflexion.

	Miroir	Dioptré	Dioptré AR	Lentille percée
Transmission	0,979	0,967	0,983	>0,98

Pour généraliser les rendements mesurés à la collection de PL des CNT, l'émission est supposée parfaitement collimatée et les variations de réflexion des optiques en fonction de la polarisation sont négligées.

Expérimentalement, le rapport de collection en cavité par l'arrière et par la fibre est facile à évaluer. Pour cela, il suffit de comparer les spectres de PL issus d'un même balayage de longueur de cavité dont un exemple est donné à la figure 5.11. Ce rapport vaut $0,75 \pm 0,11$ et ce qui est cohérent avec l'estimation de $0,9 \pm 0,5$ issue du tableau 5.2.

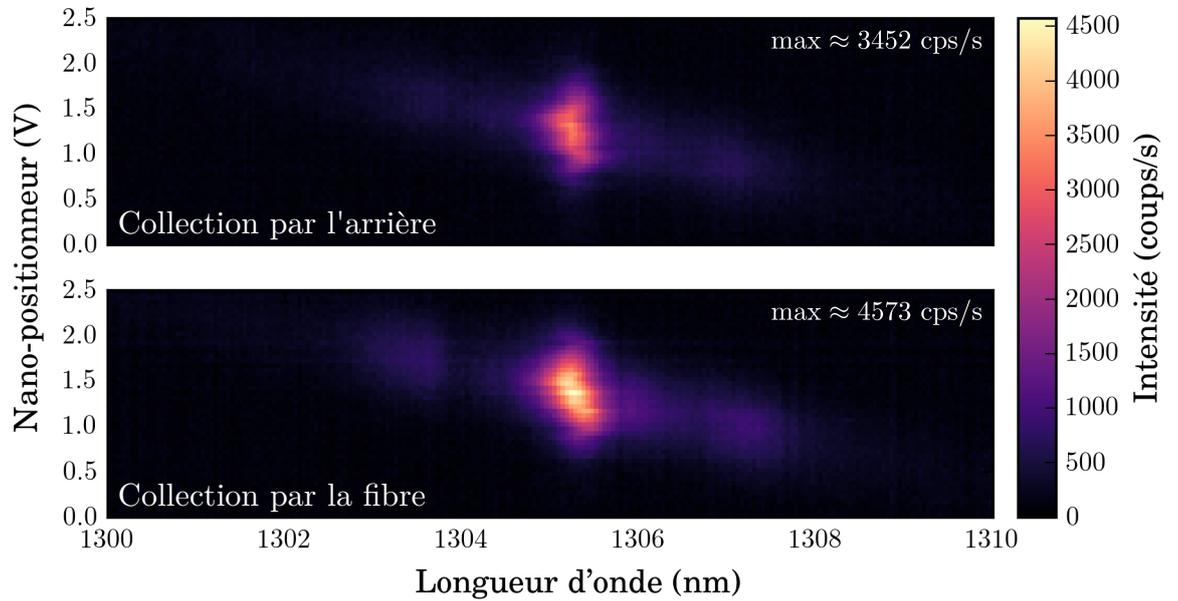


FIGURE 5.11 – Spectres de PL d’un CNT en cavité collectés par l’arrière de l’échantillon ou par la fibre usinée pour un même balayage de longueur de cavité.

L’estimation du facteur de Purcell est plus délicate. Sachant que le maximum d’émission en espace libre est de 1380 ± 50 cps/s, le rapport de l’intensité émise en cavité par celle en espace libre vaut $2,2 \pm 0,8$. Cependant, ce rapport n’est pas directement assimilable au facteur de Purcell. En effet, la longueur de cavité fluctue, ce qui étale le pic de transmission sur $610 \mu\text{eV}$ ($2,1$ nm spatialement soit $0,8$ nm spectralement pour le mode 5 d’après le chapitre 4). Ainsi, comme la ZPL du CNT en espace libre mesure $340 \mu\text{eV}$, la cavité passe environ la moitié du temps d’intégration à résonance avec le CNT ($\frac{610}{340} \approx 0,56$). Le rapport des intensités doit être multiplié par ~ 2 pour obtenir le facteur de Purcell. Pour le mode 5, il est d’environ $4,0 \pm 1,4$. Cette estimation reste très critiquable, car elle dépend drastiquement de l’estimation de l’amplitude des vibrations. De plus, un balayage pas à pas de la longueur de cavité est assez long (de l’ordre d’une dizaine de minutes), ce qui laisse le temps au système de dériver.

5.2.1.3 Estimation du facteur de Purcell

Pour s’affranchir des vibrations, une modulation triangulaire et bien contrôlée est imposée à l’actionneur rapide P-111.01T PICA PhysikInstrumente utilisé pour la stabilisation active du dispositif et présenté dans le chapitre précédent. Le mode de cavité explore de nombreuses fois une large plage spectrale pendant le temps d’intégration.

Les valeurs typiques de vibrations à température cryogénique sont de $2,1$ nm et le déplacement imposé à l’actionneur est de 22 nm (voir les parties 4.2.2.2 et 4.3.2.1).

Ainsi, la modulation imposée à la longueur de cavité est 10 fois plus élevée que celle due aux vibrations.

La transmission de la cavité en lumière blanche pendant la modulation a été mesurée pour estimer précisément cette amplitude et pour vérifier que la vitesse de balayage est homogène sur tout le spectre (voir la figure D.20). Après une normalisation tenant compte de l'aire spectrale couverte par le mode de cavité, il est possible de comparer l'émission obtenue sur la ZPL à celle en espace libre.

Pour éviter une variation d'intensité due à une dérive, la procédure d'accord spatial détaillée à la partie 5.2.1.1 est réitérée avant chaque acquisition. Pour chaque mode, deux mesures ont été réalisées pour éprouver leur reproductibilité.

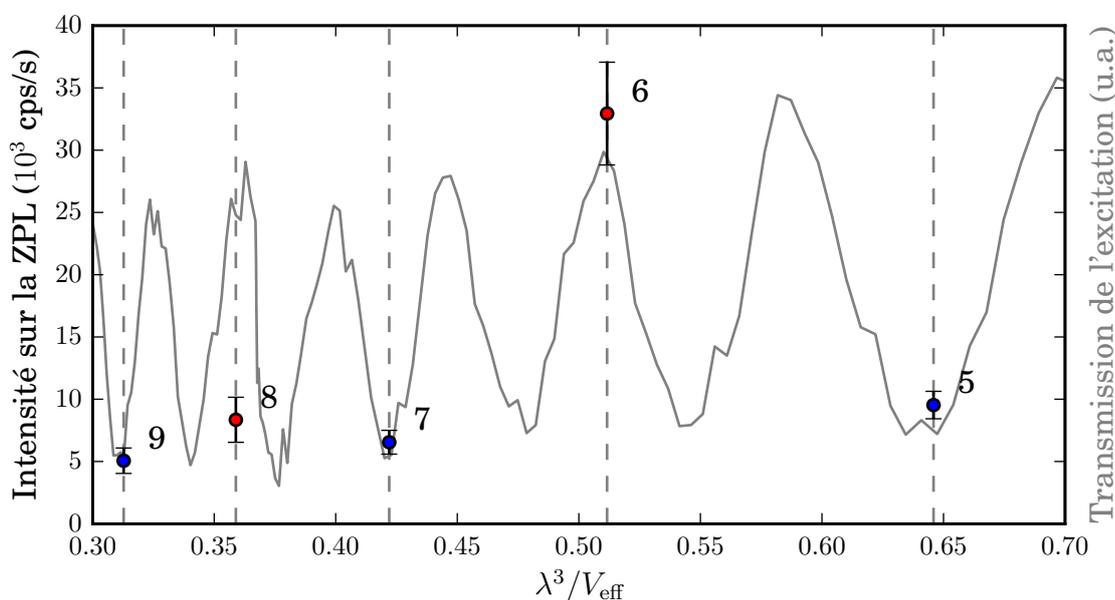


FIGURE 5.12 – Intensité de la ZPL en cavité en fonction de l'inverse du volume de mode (en unité de λ^3 pour $\lambda = 1305$ nm). Les barres d'erreur correspondent à l'écart entre les intensités pour deux acquisitions différentes. La transmission de l'excitation à travers la fibre usinée est tracée en gris. Les modes pairs (correspondant à une interférence constructive de l'excitation) sont en rouge tandis que les modes impairs (correspondant à une interférence destructive) sont en bleu.

Les intensités de la ZPL en cavité ont été tracées en fonction de l'inverse du volume effectif du mode de cavité (défini dans le chapitre 3) sur la figure 5.12. Le facteur de Purcell croît linéairement avec l'inverse du volume donc l'intensité d'émission de la ZPL devrait faire de même. Toutefois, cette intensité est 3 fois plus élevée pour le mode 6 que celle du mode 5. Cela peut s'expliquer par des effets d'interférences sur l'intensité d'excitation. En effet, bien que l'excitation à 856 nm du CNT soit en dehors de la bande de réflexion des miroirs diélectriques, sa puissance intra-cavité varie significativement. À cette longueur d'onde, le coefficient de réflexion

est théoriquement de 0,5 et la finesse \mathcal{F} de la cavité atteint environ 4,5 (voir la partie 4.3.3).

Pour donner une idée des variations, il y a un facteur $1 + \left(\frac{2\mathcal{F}}{\pi}\right)^2$ entre le minimum et le maximum d'excitation, soit environ 9 à 856 nm. Si les interférences sont constructives, le rapport de l'intensité d'excitation en cavité par celle en espace libre vaut 2 tandis qu'il vaut 0,22 pour des interférences destructives.

Expérimentalement, les variations d'excitation sont moins marquées. Cela peut être dû à un brouillage du contraste à cause d'autres d'interférences parasites (mentionnées aussi dans l'annexe D.2.5). Néanmoins, il existe une relation de phase entre les modes de cavité résonants avec l'émetteur et les nœuds et ventres d'excitation. Le rapport des longueurs d'ondes vaut $\frac{1305}{856} \approx 1,5$: l'excitation est constructive pour les modes pairs et destructive pour les impairs. Pour le confirmer, la transmission de l'excitation à travers la fibre usinée a été superposée aux intensités du graphique 5.12. En distinguant les modes pairs des modes impairs, l'intensité est bien croissante avec l'inverse du volume de mode.

Le rapport du flux de photons en cavité par celui en espace libre (Cavité/Espace libre) ont été calculés et sont regroupés dans le tableau 5.4.

TABLE 5.4 – Facteur de Purcell F_p^* estimé pour la micro-cavité utilisée (rappel de la partie 3.2.3.1), intensité maximale I_{\max} des spectres reconstruits et rapport du flux de photons correspondant par celui en espace libre pour les modes de cavité entre 5 et 9. Dans un cas idéal le rapport « Cavité/Espace libre » devrait s'identifier au facteur de Purcell.

Modes	5	6	7	8	9
F_p^*	20	17	15	13	11
I_{\max} en cavité (10^3 cps)	10,4±1,4	35,6±3,6	7,1±0,9	8,5±2,0	5,3±0,9
Cavité/Espace libre	5,3±2,2	18,1±7,4	3,7±1,5	4,4±2,0	2,7±1,2

Pour les comparer aux facteurs de Purcell estimés dans la partie 3.2.3.1 (rappelés dans le tableau), il faudrait étalonner l'intensité d'excitation. Néanmoins, il est possible d'estimer les effets d'interférence en considérant qu'elles sont la cause principale des variations d'intensité mesurées. En effet le facteur de Purcell ne devrait diminuer que de 15% entre le mode 5 et 6 alors qu'une augmentation d'intensité d'émission de 240% est constatée.

Sous cette hypothèse, le contraste d'excitation est d'environ 55%. Le contraste valant $\frac{2}{2+F}$ (où F est le coefficient de finesse), cela correspond à un coefficient de réflexion d'environ 0,3. Cela donne un rapport de l'intensité d'excitation en cavité par celle en espace libre de 1,4 dans le cas constructif et de 0,42 dans le cas destructif.

Pour plus de précision, un ajustement a été réalisé avec, pour paramètre libre, le coefficient de réflexion. Il est tracé en haut de la figure 5.13. Sur ce graphique comme sur celui tracé à la figure 5.12, les mesures obtenues pour le mode 8 ($\frac{\lambda^3}{V_{\text{eff}}} \approx 0,36$)

semblent incohérentes⁵. Par précaution, un second ajustement en bas de la figure 5.13 a été réalisé en négligeant ce point ce qui ne change pas drastiquement les résultats.

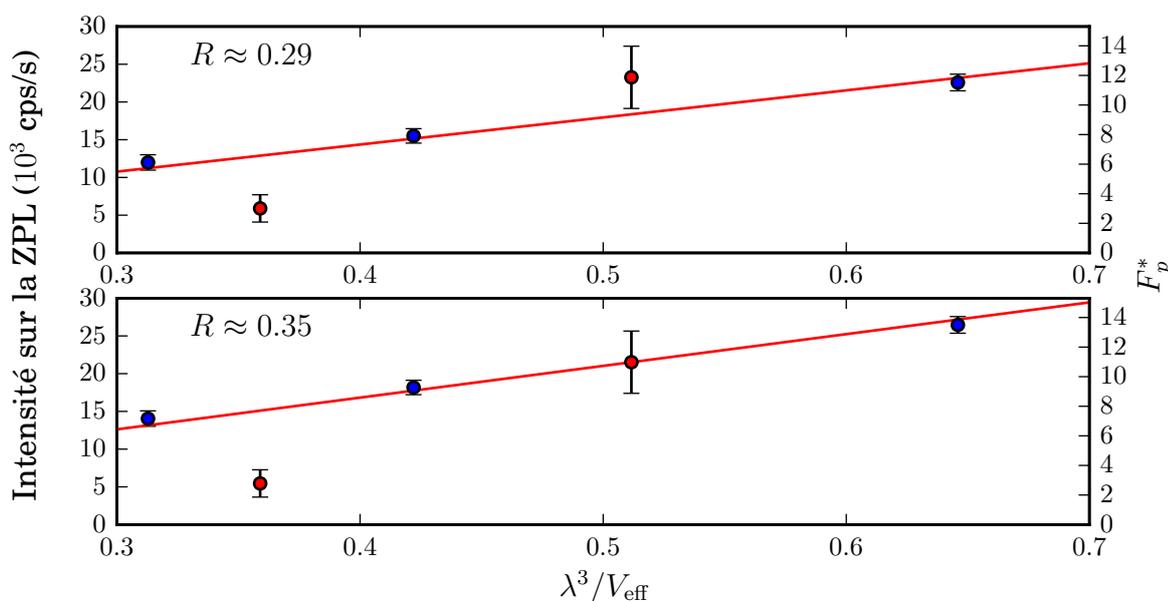


FIGURE 5.13 – Estimations des intensités d’émission de la ZPL en cavité en estimant les effets d’interférence de l’excitation arrière. **En haut** : Les effets d’interférences de l’excitation sont modélisés à partir de tous les points. Les intensités prennent en compte un coefficient de réflexion de 0,29. **En bas** : Le point à $\frac{\lambda^3}{V_{\text{eff}}} \approx 0,36$ est négligé dans l’ajustement. Le coefficient de réflexion obtenu est de 0,35.

L’axe des ordonnées à droite des graphiques de la figure 5.13 donne les facteurs de Purcell correspondant aux intensités. Au moins dans le cas des interférences destructives de l’excitation (points bleus), leur évolution est linéaire avec l’inverse du volume de mode. Ils s’étalent de 14 à 10 avec une incertitude de l’ordre de 40% (voir le tableau 5.2 des rendements de collection). Ces valeurs sont plus basses que les estimations calculées dans la partie 3.2.3.1. Cela peut provenir d’un problème d’accord spatial dû à la profondeur non contrôlée du CNT dans la matrice de PS (dans ce cas le facteur de Purcell est pondéré par $\left| \frac{E(r)}{E_{\text{max}}} \right|^2$), à une mauvaise évaluation de la collection ou du volume de mode. Pour confirmer cette estimation des facteurs de Purcell des mesures de variations de temps de vie seraient nécessaires. Elles seraient plus fiables, car elles sont indépendantes du taux de collection. Cependant, pour quantifier les effets de couplage, il est aussi possible d’étudier l’intensité émise par le CNT en cavité sur toute sa plage d’émission comme traité dans la partie suivante.

5. Les mesures obtenues pour le mode 6 sont nettement plus intenses donc a priori moins sujettes à un problème d’alignement

5.2.2 Effet sur l'intégralité du spectre

Il est possible de mettre à profit l'accordabilité de la micro-cavité Fabry-Pérot pour rechercher des signatures du couplage en dehors de la résonance avec la ZPL. En effet, la totalité du spectre d'émission du CNT peut être balayé en contrôlant la longueur de cavité. Un balayage typique est présenté sur la figure 5.14 (en haut) et un simple filtrage de l'émission en l'espace libre a été simulé (en bas). Ces deux cartes d'intensité sont normalisées par la ZPL. Une différence apparaît nettement : les ailes de phonons ressortent plus dans les données que dans la simulation. Cet effet, visible sur un spectre normalisé, est indépendant de l'intensité d'excitation. Modéliser ce phénomène permet donc d'étayer les mesures de la partie précédente sans souffrir des mêmes biais.

Les balayages pas à pas de la longueur de cavité permettent de contrôler l'accord spatial et spectral entre l'émetteur et le mode de cavité. Toutefois, cette manière d'acquérir les données est très sensible aux vibrations et à la dérive. Une méthode plus robuste a donc été mise en place pour obtenir directement le profil spectral de l'émission d'un CNT en cavité.

La partie 5.2.2.1 décrit la méthode utilisée pour reconstruire le profil spectral d'émission d'un CNT en cavité et l'évolution qualitative de ce profil avec le volume de mode. Puis, la partie 5.2.2.2 lie ce profil à l'efficacité de la source formée par l'émetteur en cavité. Enfin, la partie 5.2.2.3 met à profit le modèle développé dans la partie 3.1.2.1 et dans l'annexe B.2 pour évaluer le taux de couplage entre l'émetteur et la cavité et estimer le rendement radiatif.

5.2.2.1 Reconstruction du spectre en cavité

Pour une meilleure reproductibilité des mesures, le balayage pas à pas a été remplacé par un balayage rapide de la longueur de cavité (comme dans la partie 5.2.1.3). Le but de cette méthode est de réduire la durée d'acquisition et rendre négligeables les fluctuations de longueur de cavité devant une modulation contrôlée. Le mode de cavité parcourt de nombreuses fois la plage d'émission du CNT pendant le temps d'exposition de la caméra. Cela permet d'obtenir le profil spectral d'émission du CNT en cavité comme résumé sur la figure 5.15.

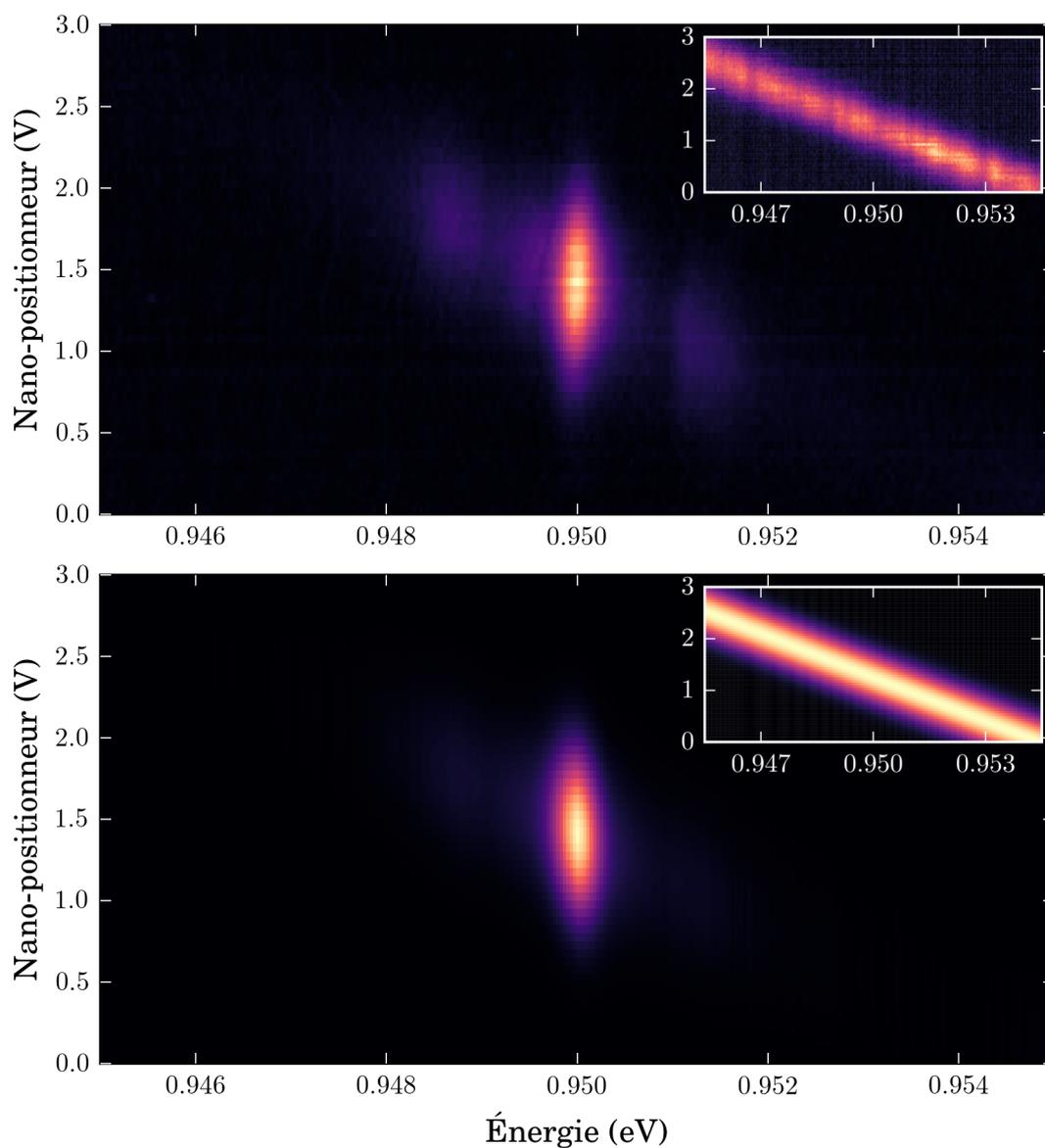


FIGURE 5.14 – **En haut** : Spectres de PL d'un CNT en fonction de la tension aux bornes du nano-positionneur (la longueur de cavité augmente avec la tension). L'intensité est représentée par une échelle de couleur. L'encart montre la transmission du mode TEM₀₀ éclairé en lumière blanche pour le même balayage de longueur de cavité. **En bas** : Simulation de la PL du même CNT en espace libre filtrée par la cavité. L'émission en espace libre est issue d'une mesure et la transmission de la cavité provient de l'ajustement visible dans l'encart.

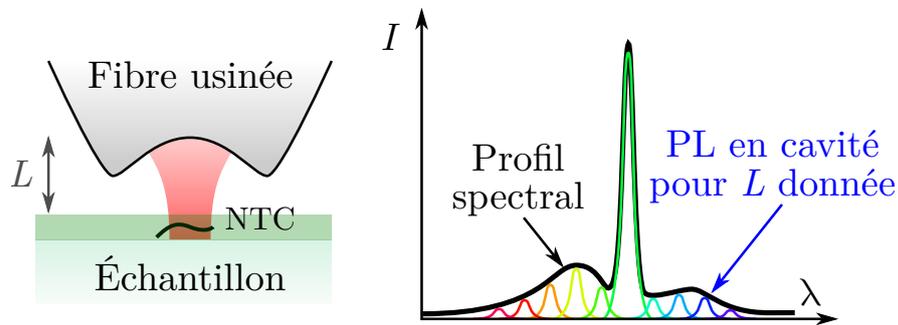


FIGURE 5.15 – Pour reconstruire le profil spectral du CNT en cavité, la longueur de cavité est balayée avec une amplitude et une fréquence suffisamment élevées pour que le mode de cavité explore plusieurs fois l’aire d’émission du CNT durant le temps d’intégration du spectromètre.

Dans ces conditions, le temps d’intégration pour un spectre est de 30 s, ce qui est 20 fois plus rapide qu’un balayage pas à pas. Un profil d’émission d’un CNT pour le mode 5 de la cavité est comparé à son spectre d’émission en espace libre et au spectre de transmission de la cavité sur la figure 5.16.

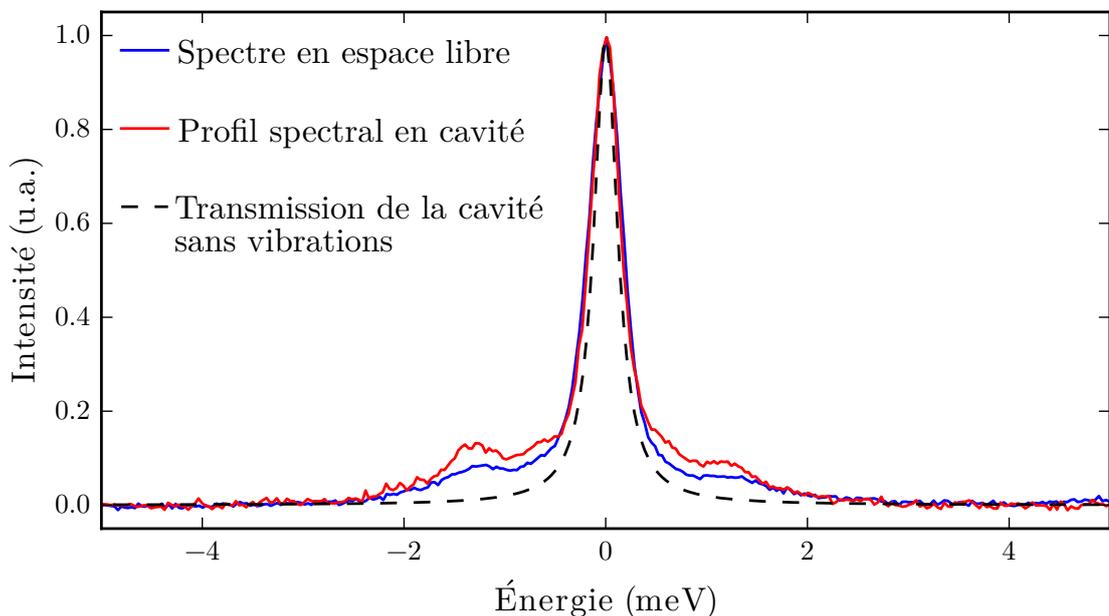


FIGURE 5.16 – Spectre d’émission en espace libre d’un CNT (en bleu) et le profil spectral du même CNT pour le mode 5 de la cavité (en rouge) normalisés par le maximum de la ZPL. La largeur de la ZPL est très proche de celle du pic de transmission de la cavité sans vibrations.

Comme dans le cas du balayage pas à pas, les ailes de phonons sont plus apparentes en cavité qu’en espace libre relativement à la ZPL. En pratique, pour minimiser

l'influence du bruit, la normalisation est obtenue à partir d'un ajustement lorentzien de la ZPL. Un zoom sur les PSB est visible sur la figure 5.17 : qualitativement plus le volume de mode est faible, plus les PSB sont hautes.

Pour mieux appréhender le phénomène, l'intensité intégrée sur les PSB (zones colorées sur la figure 5.17) sont tracées figure 5.18 et comparées à celles en espace libre (une fois normalisées sur la ZPL). Les points rouges font référence à la PSB de plus basse énergie que la ZPL et, les bleus, à la PSB de plus haute énergie. Les zones sur lesquelles l'intensité est intégrée sont indiquées sur la figure 5.17. Les PSB sont plus intenses en cavité qu'en espace libre et, plus le volume de mode est faible, plus l'intensité de l'aile rouge est élevée.

Ce comportement peut être compris en exprimant la relation entre le profil d'émission et l'efficacité de la source formée par le CNT en cavité.

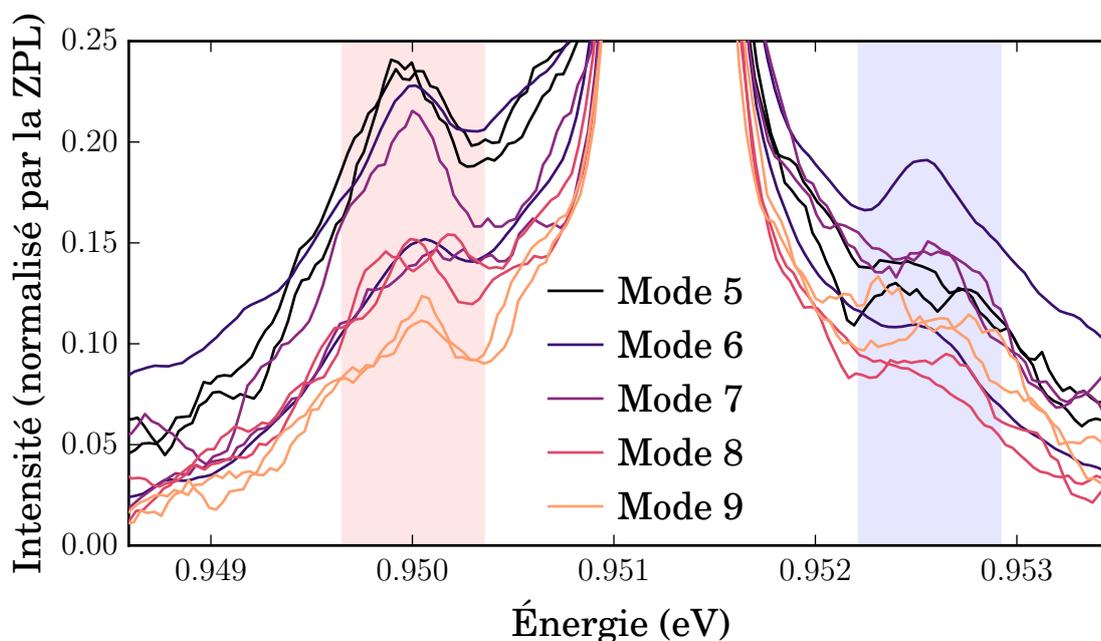


FIGURE 5.17 – Zoom sur les ailes de phonons des profils spectraux normalisés par l'intensité de la ZPL. Les aires colorées font référence aux zones d'intégration considérées pour le pour tracer la figure 5.18.

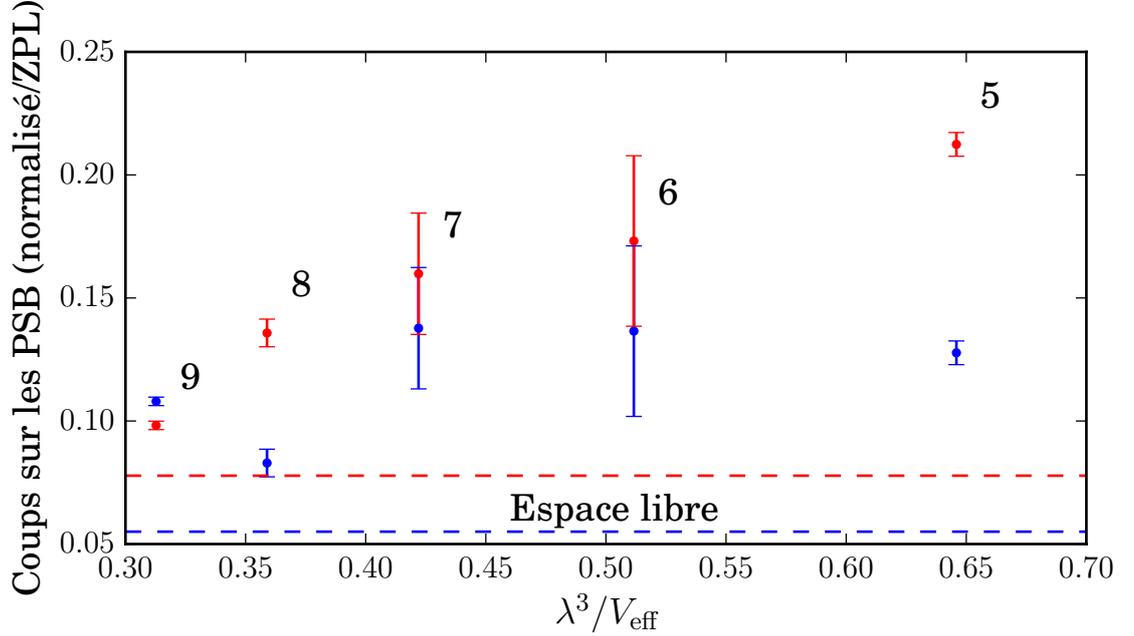


FIGURE 5.18 – Intensité intégrée sur les PSB (figure 5.17) après normalisation des profils spectraux par l’intensité de la ZPL. Les points correspondant à la PSB rouge sont en rouge et ceux de la PSB bleue, en bleu. Les barres d’erreur correspondent à l’écart entre les coups pour deux acquisitions différentes. Les lignes en pointillés donnent la référence de ces intensités en espace libre.

5.2.2.2 Lien entre l’efficacité et le spectre reconstruit

La théorie développée dans la partie 3.1.2.2 et l’annexe B.2 permet de calculer l’efficacité β d’un émetteur à l’état solide couplé à une cavité. Cette efficacité est définie comme le nombre moyen de photons émis (indépendamment de leur énergie) pour une unique excitation du système et une pulsation ω_{cav} fixée. Elle s’exprime à partir des spectres d’émission $S_{\text{émi}}$ et d’absorption S_{abs} de l’émetteur, du taux de couplage g et des taux de relaxation γ et κ de l’émetteur et de la cavité [39] :

$$\beta(\omega_{\text{cav}}) = \frac{g^2 \kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}})}{g^2 (\kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\omega_{\text{cav}}) + \gamma \tilde{S}_{\text{abs}}(\omega_{\text{cav}})) + \gamma \kappa} \quad (5.2)$$

où les spectres S sont normalisés tels que $\int S(\omega) d\omega \equiv 2\pi$ et \tilde{S} désigne la convolution $S * T_{\text{cav}}$ du spectre S avec le profil lorentzien de la transmission du mode de cavité normalisé à 1 et centré en 0, T_{cav} .

Faire le lien entre les données expérimentales et l’efficacité permettrait d’extraire des informations intéressantes sur le système d’émetteur couplé en cavité. Dans le cas idéal d’une cavité très fine sans vibration, cette efficacité serait obtenue par un balayage de la longueur de cavité en intégrant indifféremment le nombre de coups

mesurés à une longueur de cavité fixe ou à une longueur d'onde fixe (voir figure 5.19a). Dans le cas où la cavité est fine mais le système vibre, les balayages ne sont pas réalisés en imposant la longueur de cavité, L , mais sa moyenne temporelle, L_{moy} . Le profil obtenu en intégrant les coups à longueur moyenne fixée est lissé par la distribution des vibrations, D_{vib} , ce qui le rend inexploitable. Seul le profil spectral, noté P_{bal} , n'est pas influencé par les vibrations et s'identifie toujours à β (voir figure 5.19c).

Cependant, la cavité utilisée a un facteur de qualité du même ordre de grandeur que celui de l'émetteur (figure 5.16) et ne peut donc pas être considérée comme fine. Dans ce cas, le lien entre le profil spectral, P_{bal} , et l'efficacité, β , n'est pas connu analytiquement⁶. Il paraît néanmoins raisonnable de supposer que β s'identifie au profil spectral convolué par la transmission de la cavité (sans vibrations) :

$$\beta(\omega_{\text{cav}}) \approx (P_{\text{bal}} * T_{\text{cav}})(\omega_{\text{cav}}) \quad (5.3)$$

6. La théorie développée dans l'article [39] permet de calculer l'efficacité quelle que soit la largeur de la cavité mais ne donne pas accès aux spectres et donc au profil spectral.

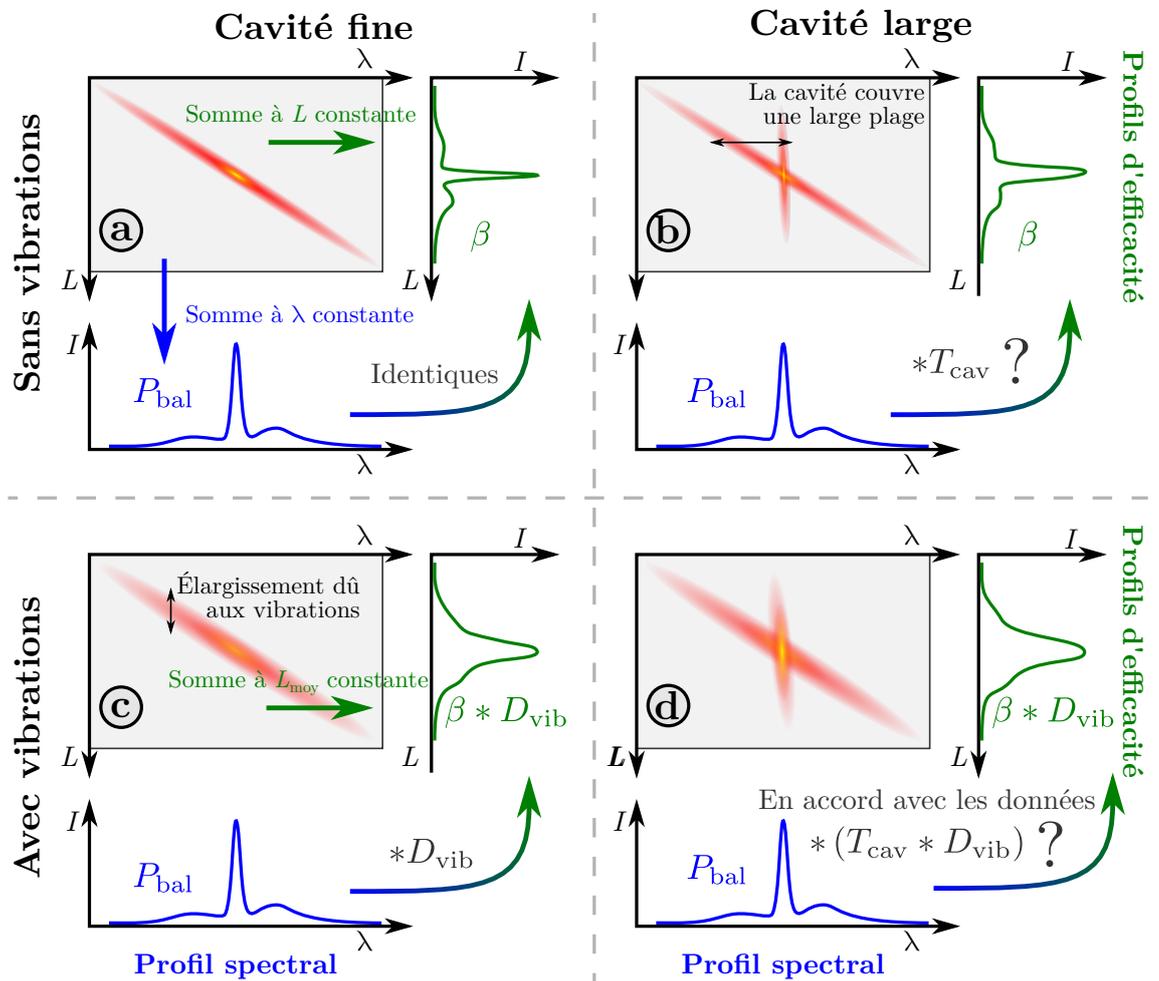


FIGURE 5.19 – Liens entre le profil spectral P_{bal} et l'efficacité du système émetteur en cavité β . Les cartes en rouge représentent des balayages de la longueur de cavité comme ceux de la figure 5.14. Dans le cas d'une cavité fine spectrale (a et c), P_{bal} s'identifie à β . La relation est plus complexe pour une cavité large (b et d). Pour une cavité non soumise à des vibrations (a et b), β pourrait directement être extraite en intégrant les coups mesurés (toutes longueurs d'onde confondues) à longueur de cavité fixée. En présence de vibrations (c et d), les fluctuations de longueur de cavité lissent le profil d'efficacité et le rendent inexploitable.

Pour être en accord avec les données expérimentales, la relation 5.3 impose que le profil d'efficacité élargi par les vibrations $\beta * D_{vib}$ doit être égal au profil spectral convolué par la transmission de la cavité avec vibrations $P_{bal} * (T_{cav} * D_{vib})$ (voir le schéma 5.19d). Cette identification a été vérifiée sur les données du balayage de la figure 5.14, elle est présentée figure 5.20.

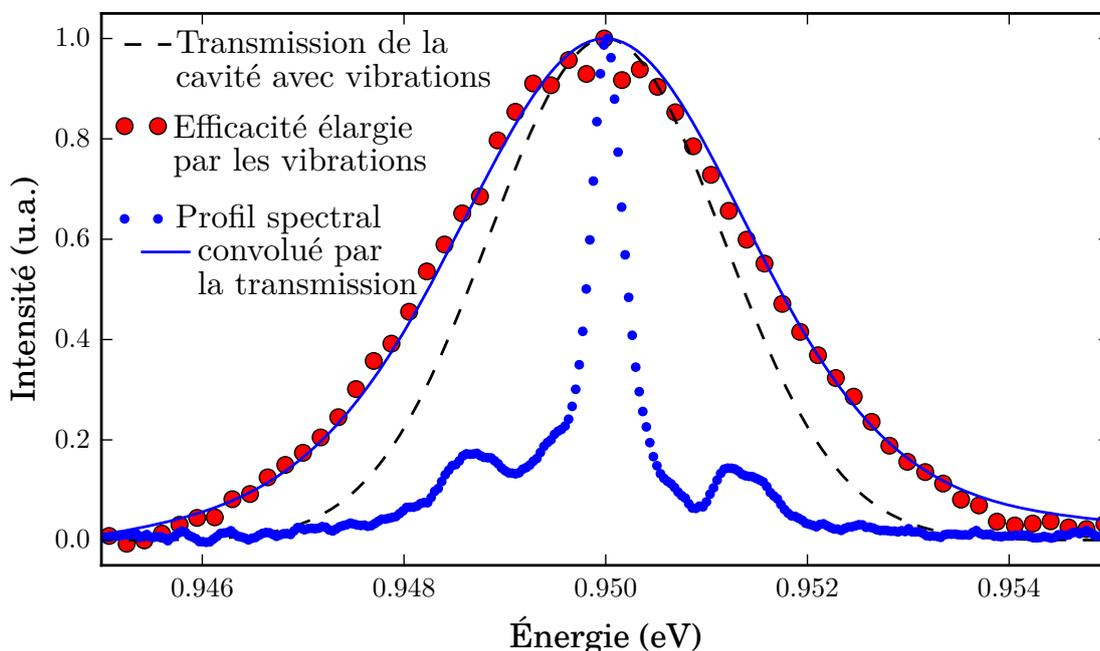


FIGURE 5.20 – Correspondance du profil d’efficacité élargi par les vibrations $\beta * D_{\text{vib}}$ (points rouge) avec le profil spectral P_{cav} (points bleus) convolué par le pic de transmission de la cavité élargi par les vibrations $P_{\text{bal}} * (T_{\text{cav}} * D_{\text{vib}})$ (ligne bleue). Pour comparer, la transmission de la cavité élargi par les vibrations est aussi représentée (pointillés noirs).

Grâce à la relation 5.3, il est possible d’estimer le couplage g grâce à un ajustement.

5.2.2.3 Estimation du couplage

La mesure du spectre d’absorption à l’échelle de l’objet unique reste délicate à température ambiante [260] et n’a encore jamais été réalisée à température cryogénique [60]. Cependant, dans le cas du couplage d’un exciton localisé avec un bain de phonons, le modèle d’Huang et Rhys prédit que S_{abs} est le symétrique de $S_{\text{émi}}$ par rapport à $\omega_{\text{ém}}$ [261]. Ainsi, l’efficacité β est calculée à partir de la formule 5.2 avec :

$$\tilde{S}_{\text{abs}}(\omega) \approx \tilde{S}_{\text{émi}}(2\omega_{\text{ém}} - \omega) \quad (5.4)$$

Pour cette cavité, la finesse vaut environ 750 (voir partie 3.2.3.1) donc κ est obtenu pour chaque mode p avec la relation $\kappa = \frac{\omega_{\text{cav}}}{p\mathcal{F}}$. Or, pour pouvoir estimer le couplage g , il faut aussi évaluer le taux de relaxation de l’émetteur γ . Comme aucune mesure de temps de vie n’a pu être réalisée dans cette thèse, la valeur de γ a été fixée à partir d’une étude publiée sur les mêmes échantillons [31]. Ainsi, le temps de vie est de 100 ps pour le CNT (7,5) dopé dont sont issues les données présentées dans ce chapitre.

Le temps de vie dans la cavité vaut $1/\kappa = \frac{pF}{2\pi c} \lambda_{\text{cav}}$ soit environ 3 ps pour le mode 5 et 5 ps pour le mode 9. Ainsi $\frac{\kappa}{\gamma} > 20$, et donc l'influence de la réabsorption est relativement négligeable dans l'efficacité de la source.

Un exemple d'ajustement par β du profil $P_{\text{bal}} * T_{\text{cav}}$ est présenté sur la figure 5.21.

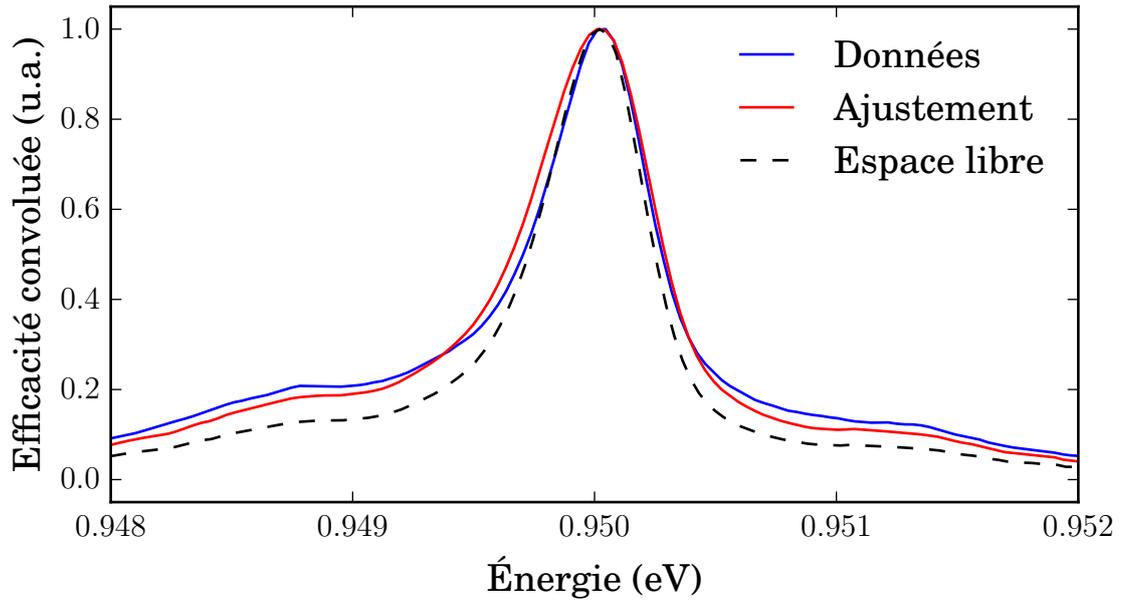


FIGURE 5.21 – Profil $P_{\text{bal}} * T_{\text{cav}}$ (en bleu) et l'ajustement de β correspondant (en rouge). Le seul paramètre d'ajustement est le taux de couplage g . Pour comparer, le spectre d'émission en espace libre convolué $S_{\text{émi}} * T_{\text{cav}}$ est aussi tracé (pointillés noirs).

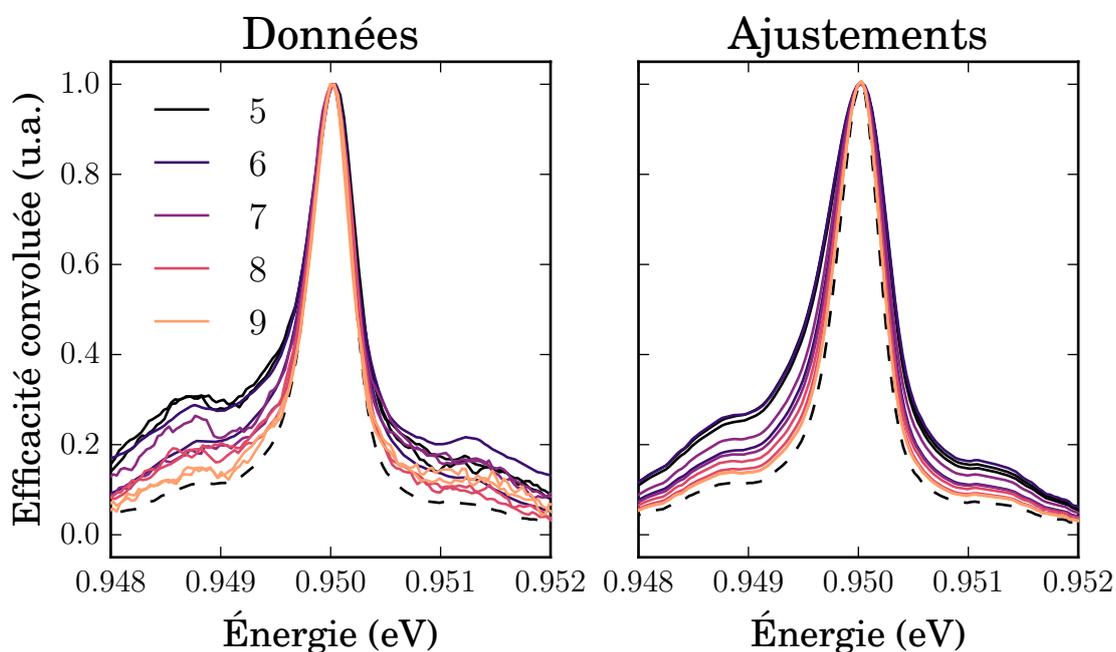


FIGURE 5.22 – Profils $P_{\text{bal}} * T_{\text{cav}}$ pour les modes de cavité 5 à 9 (à gauche, deux mesures par mode) et les ajustements de β correspondant (à droite). Le seul paramètre d’ajustement est le taux de couplage g . Pour comparer, le spectre d’émission en espace libre convolué $S_{\text{émi}} * T_{\text{cav}}$ est aussi tracé (pointillés noirs).

L’ajustement est appliqué à 10 profils $P_{\text{bal}} * T_{\text{cav}}$ pour les modes 5 à 9 (deux mesures par mode de cavité) pour estimer l’évolution du couplage en fonction du volume de mode. Ces profils et les ajustements sont présentés sur la figure 5.22. Les couplages issus des ajustements sont reportés sur la figure 5.23. L’évolution de g est linéaire avec l’inverse de la racine du volume comme attendu (voir la partie 3.1.1). Pour le mode 5, l’énergie de couplage atteint environ $30 \mu\text{eV}$ soit 10 fois moins que la largeur d’émission de $340 \mu\text{eV}$: $g \ll \gamma^*$, le régime de couplage est faible.

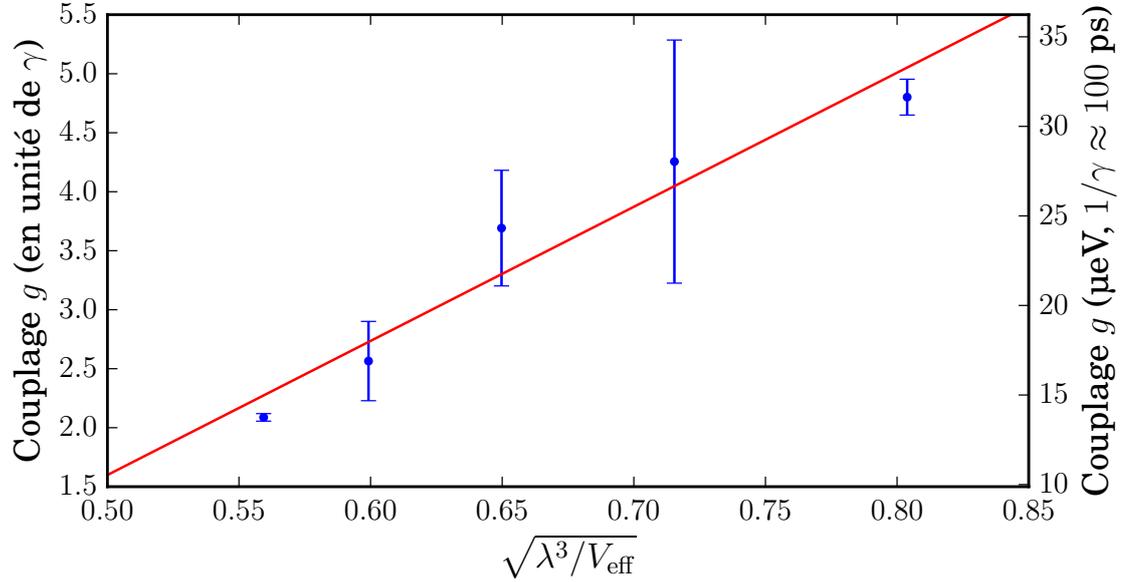


FIGURE 5.23 – Évolution du taux de couplage entre l'émetteur et la cavité en fonction de l'inverse de la racine du volume de mode (points bleus). Les barres d'erreur correspondent à l'écart entre les couplages estimés pour deux acquisitions différentes. La droite rouge est une régression linéaire sur les 5 points.

D'après la partie 3.1.2.2, le facteur de Purcell s'exprime aussi en fonction du taux de couplage :

$$F_p^* = \frac{4g^2}{\gamma^R \gamma_{\text{tot}}} \quad (5.5)$$

où γ^R désigne l'inverse du temps de vie radiatif et $\gamma_{\text{tot}} = \kappa + \gamma^* + \gamma$.

Le rendement radiatif $\eta = \frac{\gamma^R}{\gamma}$ n'a pas été tabulé pour les CNT dopés étudiés. Il a donc été estimé à partir du coefficient de proportionnalité entre les facteurs de Purcell obtenus à partir du couplage et ceux issus du rapport des flux de photons à la partie 5.2.1.3 (voir la figure 5.24). L'incertitude sur ce rendement est de l'ordre de 40% (voir partie 5.2.1.3). L'écart entre les facteurs de Purcell des deux méthodes est minimal pour un rendement radiatif η d'environ $(8 \pm 3)\%$, ce qui est en accord avec les valeurs typiques reportées dans la partie 1.3.2. Il correspond à un temps de vie radiatif de $1,3 \pm 0,5 \text{ ns}$, en accord avec les valeurs de l'ordre de quelques ns dans la littérature [262, 263, 84].

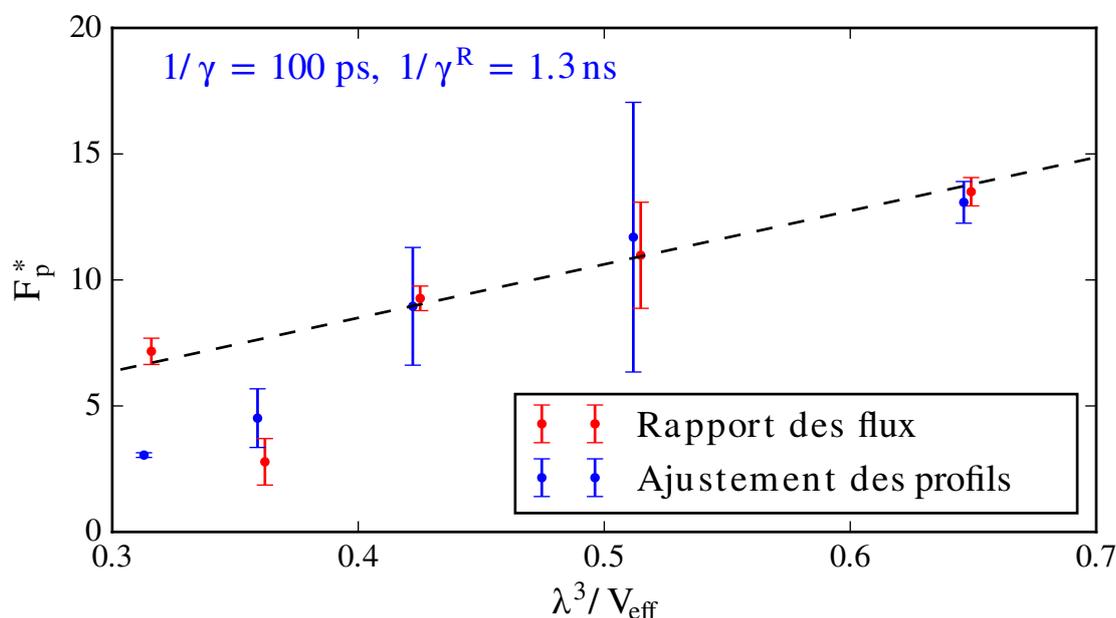


FIGURE 5.24 – Facteurs de Purcell en fonction de l’inverse du volume de mode. Les points rouges sont calculés à partir des flux de photons (voir partie 5.2.1.3) et les points bleus sont calculés à partir du couplage g en ajustant le temps de vie radiatif sur l’ensemble des points. Pour plus de lisibilité, les points rouges sont légèrement décalés sur la droite. Les barres d’erreur correspondent à deux acquisitions différentes pour chaque mode. La droite en pointillés noirs est un ajustement linéaire des données.

Conclusion

Ce chapitre décrit la mise en œuvre d’un montage robuste permettant d’étudier l’émission d’un même CNT en espace libre et en micro-cavité sous une excitation comparable. Ce dispositif laisse la possibilité de collecter l’émission en cavité via l’arrière de l’échantillon ou de la guider dans la fibre usinée. Les rendements de ces deux voies de collection sont sensiblement identiques. Ainsi, la comparaison des flux de photons émis en espace libre et en cavité a permis de calculer un facteur de Purcell entre 10 et 14 pour les modes 9 à 5. L’émission du CNT en cavité a donc été augmentée d’au moins un facteur 10 grâce à la micro-cavité. Les variations importantes de l’excitation intra-cavité ont pu être prises en compte dans cette estimation mais, par la suite, il serait possible de s’en affranchir en utilisant une excitation large bande. Ces données pourraient être complétées par des mesures de temps de vie pour vérifier si l’accélération de l’émission spontanée correspond bien aux facteurs de Purcell mesurés.

Le couplage entre la cavité et l’émetteur a aussi été mis en relief par la déformation de l’efficacité d’émission en cavité. L’accroissement d’intensité plus rapide sur les

PSB que sur la ZPL sur les profils spectraux confirme le modèle [39] rappelé dans l'annexe B.2. En se basant sur les mesures de temps de vie publiées [31] pour les même échantillons, le couplage se situe entre 14 et 32 μeV . Ces valeurs sont cohérentes avec les mesures effectuées sur la version antérieure de ce dispositif avec des CNT émettant autour de 900 nm [222]. Comme attendu, le comportement des facteurs de Purcell calculés à partir des rapports de flux de photons ou déduits du couplage est bien linéaire en fonction de l'inverse du volume de mode.

Pour simplifier cette analyse, il faudrait réitérer l'expérience avec une cavité de plus haute finesse pour pouvoir identifier directement le profil spectral reconstruit à l'efficacité du système émetteur en cavité. *In fine*, une mesure de corrélation d'intensité permettrait de confirmer que le système est bien équivalent à une source de photons uniques accordable dans les bandes télécoms.

Conclusion et perspectives

Les nanotubes de carbone ont la particularité rare de pouvoir émettre des photons dégroupés à température ambiante et dans les bandes télécoms. Cela fait d'eux des candidats prometteurs pour la réalisation de sources de photons uniques. En outre, ces structures auto-assemblées sont simples à produire et à purifier et leur caractère autonome⁷ les rend contactables électriquement et donc intégrables à un dispositif sur puce [19, 18]. Toutefois, ces émetteurs sont extrêmement dépendants de leur environnement et possèdent un faible rendement quantique. Ces deux inconvénients majeurs représentent un frein pour leur application aux communications quantiques.

Ce travail de thèse propose différentes approches pour s'affranchir de ces limitations. En premier lieu, nous avons mené une étude sur les interactions entre les nanotubes et leur environnement sur des CNT de grande longueur présentant des raies multiples de photoluminescence à basse température [41]. Grâce à un montage d'imagerie hyperspectrale super-résolue, nous avons pu démontrer que ces raies proviennent d'émetteurs indépendant répartis sur un même nanotube de carbone. Cela confirme une localisation des excitons à température cryogénique en accord avec les comportements 0D relevés dans la forme des spectres d'émission [27, 28, 104], la diffusion spectrale [102], l'élargissement inhomogène [25, 103] ou la statistique d'émission [20] des nanotubes de carbone. En outre, nous avons sondé les différents sites de piégeages d'une même nano-structure grâce à une excitation quasi-résonante. Les résultats obtenus ont pu être reproduits à partir d'une simulation numérique supposant un potentiel aléatoire dû à l'environnement diélectrique le long du nanotube. L'absence de résonance commune à tous les sites dans les spectres de PLE montre une disparition de la transition propre à l'exciton libre et une absorption privilégiée via des niveaux excités localisés. Ainsi, différents sites d'émission présents sur un même nanotube se comportent comme des boîtes quantiques indépendantes et peuvent être adressés soit individuellement par une transition quasi-résonante, soit collectivement à une énergie plus élevée. Pour diminuer les fluctuations de longueur d'onde et d'intensité d'émission des nanotubes, il faut probablement minimiser l'excès d'énergie introduit dans le système lors de son excitation [35]. Dans ce but, ces mécanismes d'absorption via des états excités localisés pourraient être d'une grande aide. Parallèlement à cela, la sensibilité des émetteurs à l'environnement peut être diminuée en créant des potentiels de piégeage plus profond grâce à des défauts quasi-ponctuels induits chimiquement. Les échantillons principalement exploités dans cette thèse sont des nanotubes (7,5) dopés aryle-diazonium. Ils présentent une excellente stabilité tant spectrale qu'en intensité, et émettent des photons uniques à température ambiante [32, 96, 236].

Mise à part la stabilité de l'émission, une source de photon unique performante doit atteindre un excellent rendement de collection. Cela ne peut s'obtenir qu'avec une source très directionnelle. Ainsi, pour forcer l'émission dans un mode spatial bien déterminée, nous avons couplés les CNT à une cavité optique. Cela nous a

7. Ils ne sont pas intrinsèquement dépendant d'une matrice.

CONCLUSION

aussi permis d'exalter l'émission des nanotubes de carbone par effet Purcell. En effet, coupler un émetteur à une cavité résonante peut conduire à une accélération de son taux d'émission spontanée et augmente sa directivité. Puisque le couplage est décroissant avec le volume de la cavité et donc sa longueur, celle-ci est choisie à l'échelle micrométrique. Nous avons opté pour une micro-cavité fibrée de type Fabry-Pérot, réalisée en collaboration avec l'équipe de Jakob Reichel du Laboratoire Kastler Brossel [36]. L'un des miroirs composant cette cavité est formé par le substrat de l'échantillon. L'autre est un micro-miroir parabolique usiné par ablation laser à l'extrémité d'une fibre optique. Leur réflectivité étant très proche, nous avons pu collecter la lumière émise dans le mode de cavité soit par l'arrière de l'échantillon soit par le mode guidé dans la fibre. Notons que cette sortie fibrée constitue un atout considérable pour une source de photons uniques. De plus, cette micro-cavité a l'avantage de pouvoir être accordée spatialement et spectralement avec n'importe quel émetteur dans sa bande de réflexion. Contrôler la position du micro-miroir permet un couplage déterministe : l'émetteur est étudié en espace libre puis, une fois en cavité, le couplage peut être modifié grâce au volume de mode (en ajustant la longueur de cavité par pas de $\lambda/2$). Les micro-cavités fabriquées dans le cadre de ce travail atteignent des volumes effectifs aussi faibles que λ^3 (soit environ $2\ \mu\text{m}^3$) mais un aléa expérimental lors de l'ablation laser limite parfois⁸ leur finesse. La micro-cavité majoritairement utilisée dans cette thèse présente une finesse de 750 soit un facteur 8 inférieure à celle attendue (cela correspond à des facteurs de qualité de 3750 à 6750 pour les modes explorés). Sa transmission, de largeur spectrale comparable celle des émetteurs, reste malgré tout suffisante pour obtenir des effets de CQED significatifs.

Cependant, cette géométrie de micro-cavité a le désavantage d'être sujette à des vibrations. Les fluctuations mécaniques de la longueur de cavité ne perturbent pas le couplage puisqu'elles sont plus lentes que les temps de relaxations de l'émetteur et de la cavité. Par contre, elles sont plus rapides que le temps caractéristique d'acquisition des données. Ces vibrations ne changent pas la physique du système mais complexifient son interprétation en brouillant les mesures. En rigidifiant le montage, nous avons pu réduire l'amplitude des vibrations d'un facteur 3 à température ambiante et 4 à basse température (soit une amplitude respective de 1 nm et 2 nm). Pour s'opposer aux fluctuations, nous avons implémenté une rétroaction en vue d'une stabilisation active. Pour ne pas perturber l'émetteur ou éblouir la caméra, nous avons tiré parti des variations de transmission de l'excitation à travers la cavité pour construire un signal d'erreur. Pourtant, des interférences parasites indépendantes de la cavité et un problème de phase non minimale ont empêché la stabilisation active du système. Cette constatation a néanmoins permis de concevoir une nouvelle version du dispositif plus robuste et propice à une stabilisation dans un avenir proche.

Bien que les vibrations demeurent un problème conséquent, nous avons pu observer des effets de CQED sur des nanotubes de carbone. Pour comparer leur émission en cavité à celle en espace libre, nous avons développé un dispositif original basé

8. Dans le lot fabriqué, des micro-miroirs plus performants ont déjà été identifiés et seront exploités lors d'expériences ultérieures.

sur une lentille percée à travers laquelle passe la fibre usinée. Mesurer le flux de photons sur la raie à zéro-phonon (ZPL) dans ces deux configurations, nous a permis de déduire un facteur de Purcell maximal de 14 avec une incertitude de 40%. En réitérant cette mesure sur différents modes, nous avons vérifié l'évolution linéaire du facteur de Purcell avec l'inverse du volume de mode. Par ailleurs, l'accordabilité de la cavité en longueur d'onde a été mise à profit pour balayer rapidement le spectre d'émission d'un nanotube en cavité. Les profils acquis de cette manière montrent que l'émission sur les ailes de phonons augmente plus fortement que sur la ZPL. Nous avons relié ces données expérimentales à l'efficacité de la source pour pouvoir les modéliser [39]. Leurs ajustements révèlent un couplage maximal d'environ 30 μeV entre le nanotube et la cavité. Ils vérifient aussi l'évolution linéaire de ce couplage avec $1/\sqrt{V_{\text{eff}}}$. En ajustant les facteurs de Purcell calculés à partir des rapports de flux à ceux déterminés à partir du couplage, nous avons évalué le rendement radiatif de l'émetteur dans l'espace libre à environ 8% en accord avec la littérature [134, 135].

En perspectives à court terme, réitérer ces mesures avec un meilleur micro-miroir, multiplierait a priori le facteur de Purcell par 2 (dans cette thèse, le facteur de qualité de la cavité est comparable à celui de l'émetteur $Q_{\text{eff}}^{-1} = Q_{\text{cav}}^{-1} + Q_{\text{ém}}^{-1} \approx 2Q_{\text{ém}}^{-1}$). De plus, profiter de l'absorption des états excités localisés pour injecter le minimum d'énergie dans le système pourrait augmenter le facteur de qualité de l'émetteur et donc le facteur de Purcell. Enfin, des mesures de temps vie, grâce à des capteurs supraconducteurs de photons uniques récemment acquis, étayeraient l'estimation du facteur de Purcell. Par ailleurs, bien qu'il y ait peu de doutes à ce sujet vu les études similaires réalisées dans l'équipe sur des CNT de plus petit diamètre [37], des mesures d'autocorrélation de l'intensité pourraient confirmer que le dispositif réalisé constitue bien une source de photons uniques. À plus long terme, les échantillons pourraient être excités électriquement [19, 18] pour tendre vers une source intégrée.

D'un point de vue plus fondamental, pour une cavité ne présentant pas de problème d'usinage, nous pourrions tirer parti du couplage avec le mode de cavité pour réaliser un spectre d'absorption d'un nanotube individuel à température cryogénique. Cette mesure n'a pas encore été réalisée et pourrait apporter des informations substantielles sur les états électroniques intrinsèques des nanotubes de carbone. Si, de surcroît, les nanotubes sont à l'état de l'art en terme de largeur spectrale (18 μeV [35]) le régime de couplage fort pourrait être atteint. Lorsque l'échange d'énergie entre le nanotube et la cavité devient cohérent, les excitons et les photons ne peuvent plus être traités indépendamment et forment une quasi-particule, le polariton. Ce régime offre une physique très riche comme des effets de non-linéarité à peu de photons. En outre, le cas d'un confinement unidimensionnel offrirait la possibilité de conserver des polaritons stables à température ambiante ce qui n'a jamais été observé [264]. Bien que ce travail se focalise sur des échantillons présentant des excitons localisés, un confinement unidimensionnel peut être observé dans le cas de CNT suspendus [59]. La collaboration avec l'équipe de développement de matériaux de Laetitia Marty à l'institut Néel donnerait accès à ce type d'échantillons. Une autre approche pour explorer le régime couplage fort serait de fabriquer une nouvelle génération de cavités

CONCLUSION

fibrées. En effet, le volume de mode effectif des cavités actuelles peut difficilement être amélioré, car il est limité par diffraction à $(\lambda/2)^3$. Or, cette limitation n'est valable que dans le cas d'un indice de réfraction uniforme. Nous pourrions donc mettre en place une ingénierie différente de la fibre pour graver une anomalie dans la couche diélectrique afin de créer une discontinuité du champ. Cela réduirait drastiquement le volume de mode et augmenterait fortement le couplage.

Pour conclure, le dispositif mis en place durant cette thèse constitue une source prometteuse de photons uniques accordable dans les bandes télécoms. Il est particulièrement adapté aux nanotubes de carbone, mais sa flexibilité lui permettrait d'être employé à l'étude d'autres types d'émetteurs comme les molécules uniques, les centres colorés ou les défauts dans les matériaux bidimensionnels. Notre collaboration avec l'équipe de Jean-Sébastien Lauret au laboratoire Aimé Cotton permettrait par exemple d'adapter le dispositif aux boîtes quantiques de graphène. Ces nano-émetteurs sont semblables aux molécules uniques par leur confinement très fort, leur brillance et leur émission de photons uniques à température ambiante. Néanmoins, il est possible d'adapter leur longueur d'onde d'émission en contrôlant leur taille comme dans le cas des CNT avec leur diamètre. Pendant plusieurs années, ces émetteurs étaient peu exploités du fait du manque de sélectivité de la voie de synthèse descendante (découpe du graphène). L'optimisation récente de la synthèse ascendante (par voie chimique) les rend à présent très attractifs [265].

APPENDIX A : CARACTÉRISATION DES NANOTUBES DE CARBONE

A.1 Caractérisation préliminaire

La microscopie par force atomique (AFM) permet à la fois de vérifier la rugosité de la surface et, dans le cas d'un dépôt sans matrice, la densité des CNT. Selon les types d'échantillon entre 10 et 100% des CNT donneront un signal d'émission. La densité visée en AFM est de l'ordre de 1 CNT pour $10 \mu\text{m}^2$. La figure A.1 montre une image d'un CNT particulièrement long issu d'une synthèse CoMoCAT et revêtu de PFO-BPy. Il est possible, comme sur la figure A.2, d'effectuer une coupe intégrée sur une certaine distance (cadre en pointillés noir sur la figure A.1) pour mesurer le diamètre des CNT. Cette mesure ne donne pas accès à la chiralité puisque le polymère (ici du PFO) augmente le diamètre des CNT mais permet de se convaincre que la nanostructure étudiée est bien un nanotube. Dans certains cas, il est aussi possible de détecter la présence d'agglomérats de CNT ce qui révèle un vieillissement de la solution déposée. Une rugosité typique du substrat doit être inférieure au nanomètre. Dans le cas de la figure A.1, selon les zones de l'échantillon la rugosité se situe dans l'intervalle 0,3 à 0,4 nm.

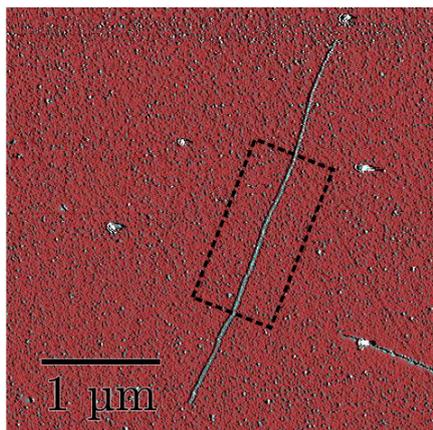


FIGURE A.1 – Image AFM en mode contact intermittent d'un CNT CoMoCAT/PFO-BPy de plus de $3 \mu\text{m}$ de long. L'encadré en pointillés désigne la zone de moyennage de la figure A.2.

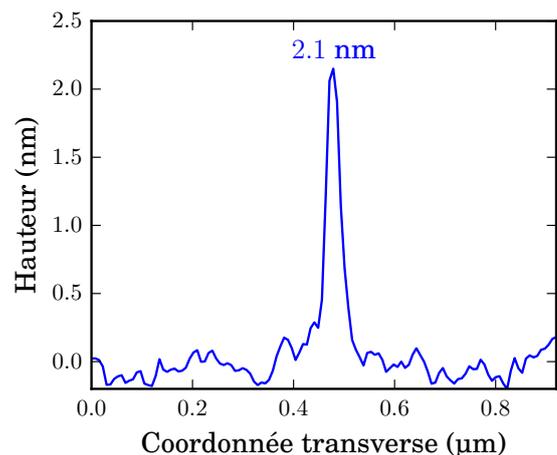


FIGURE A.2 – Hauteur du CNT figure A.1 moyennée sur l'encadré en pointillés. La hauteur est relativement élevée par rapport à un diamètre moyen de $0,7 \mu\text{m}$ pour les CoMoCAT SG65i car elle tient compte du revêtement en PFO.

A.1. CARACTÉRISATION PRÉLIMINAIRE

Pour avoir accès au diamètre réel des CNT et à la densité lors d'un dépôt en matrice, un balayage en microspectroscopie Raman est réalisé. La spectroscopie Raman s'appuie sur les mécanismes de diffusion inélastique de la lumière rendant compte de différents modes de phonons accessibles. Un phonon d'énergie $\hbar\omega_{\text{ph}}$ est soit créé soit détruit dans la nanostructure, en notant $\hbar\omega_{\text{inc}}$ l'énergie du photon incident et $\hbar\omega_{\text{diff}}$ celle du photon diffusé la conservation de l'énergie donne :

$$\omega_{\text{diff}} = \omega_{\text{inc}} \pm \omega_{\text{ph}} \quad (\text{A.1})$$

Dans le cas des nanotubes seulement quelques modes de phonons peuvent interagir avec la lumière pour des raisons de symétrie [266]. Ils se manifestent par des pics d'intensité dans le spectre¹ de la lumière diffusée et peuvent être interprétés de façon relativement simple. Ils sont dus au mode radial de respiration (RBM) et aux modes tangentiels de vibration (modes G^+ et G^-). Le mode G^+ est parallèle à l'axe du CNT tandis que le mode G^- vibre selon sa circonférence. Ainsi, les modes RBM et G^- dépendent du diamètre du CNT. Ces modes sont décrits dans la figure A.3.

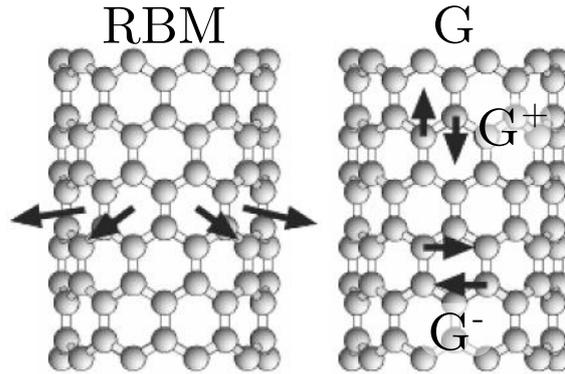


FIGURE A.3 – Schéma montrant les modes de vibrations G^\pm et RBM dans les CNT, visibles en spectroscopie Raman.

Pour les chiralités étudiées, ils apparaissent respectivement entre 150 et 450 cm^{-1} et entre 1500 et 1600 cm^{-1} . À partir des pics G il est possible de distinguer un nanotube semiconducteur d'un tube métallique et de détecter la présence de carbone amorphe. Un nanotube semiconducteur possède un pic G^+ intense à 1592 cm^{-1} environ et un pic G^- moins intense (voire absent) décalé vers les fréquences plus faibles. Un nanotube métallique possède la même configuration avec un pic G^- très large et de même intensité que le pic G^+ . La présence de carbone amorphe se manifeste par un seul pic G extrêmement large.

Des formules empiriques lient le diamètre des CNT à l'énergie des phonons RBM

1. Historiquement, l'axe des abscisses des spectres Raman s'exprime en cm^{-1} . $1000 \text{ cm}^{-1} \approx 124 \text{ meV}$.

et G^- [267, 268] :

$$d_{\text{NT}} = \sqrt{\frac{\beta_{\text{G}}}{\omega_{\text{G}^+} - \omega_{\text{G}^-}}} \quad \text{et} \quad d_{\text{NT}} = \frac{\beta_{\text{RBM}}}{\omega_{\text{RBM}}} \quad (\text{A.2})$$

où $\beta_{\text{G}} = 45,7 \text{ cm}^{-1}\text{nm}^2$ et $\beta_{\text{RBM}} = 248 \text{ cm}^{-1}\text{nm}$. Les mesures sont réalisées à partir d'un spectroscopie Raman commercial RenishawTMInvia Raman Microscope. possédant deux sources d'excitation possibles à 532 nm et à 633 nm. Pour que le signal Raman soit intense, ω_{diff} ou ω_{inc} doit correspondre à une transition optique du CNT ($S_{\mu\mu}$) [269, 270]. Comme ω_{inc} est fixée lors d'un balayage, toutes les chiralités n'apparaissent pas forcément de façon marquée. Ainsi, pour interpréter la densité tirée des cartes Raman, il faut prendre en compte la dispersion en chiralité de l'échantillon étudié. Pour un échantillon très enrichi, tous les signaux Raman seront d'amplitude comparable et la densité de CNT sur une carte Raman sera proportionnelle à celle observée en PL. Pour un échantillon présentant plusieurs chiralités, la densité risque d'être sous-estimée si les chiralités ont des réponses très différentes. En outre, la densité de CNT recherchée reste la même que pour l'AFM (1 CNT pour $10 \mu\text{m}^2$) car tous les CNT visibles en spectroscopie Raman ne photoluminescent pas nécessairement. Un spectre Raman typique d'un CNT résonant est donné à la figure A.4.

Le pic RBM donne $d_{\text{NT}} \approx 1,45 \pm 0,02 \text{ nm}$ et les pics G, $d_{\text{NT}} \approx 1,44 \pm 0,11 \text{ nm}$. Bien que le signal Raman soit intense, ce CNT est d'un diamètre trop élevé pour être étudié en photoluminescence. Sa transition S_{11} est à une longueur d'onde de plus de 1650 nm [70], en dehors de la gamme du détecteur (voir partie 1.2.2.1).

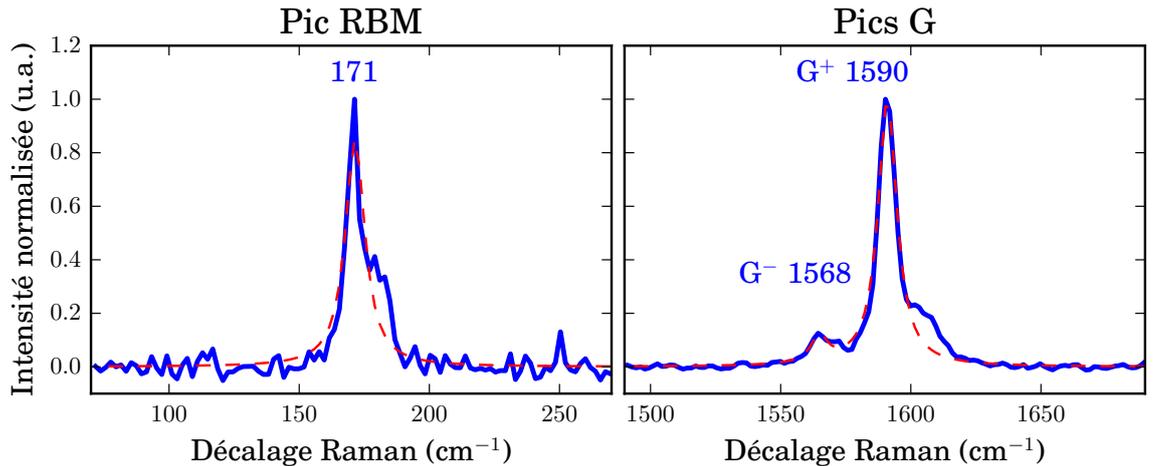


FIGURE A.4 – Pics de spectroscopie Raman typiques d'un CNT semiconducteur. Ce signal provient des CNT/PFH-A synthétisés par ablation laser et dispersés au CEA/Saclay.

Une fois un dépôt de densité convenable réalisé, l'échantillon est étudié en photoluminescence.

A.2 Miroir contrôlé et dispositif $4f$

Il est possible de déplacer la position latérale du point focal en sortie d'une lentille en changeant l'angle du faisceau parallèle incident grâce à un miroir. Cependant, ce phénomène est limité par l'angle maximal d'acceptance de la lentille. Pour que le faisceau soit rabattu en toute circonstance vers le centre de la lentille de focalisation, deux lentilles en configuration afocale sont intercalées entre le miroir et la lentille de focalisation comme sur les schémas 1.15 et A.5. Ce dispositif a l'intérêt de déplacer simultanément l'excitation avant et la collection (l'échantillon est toujours excité là où la photoluminescence est collectée).

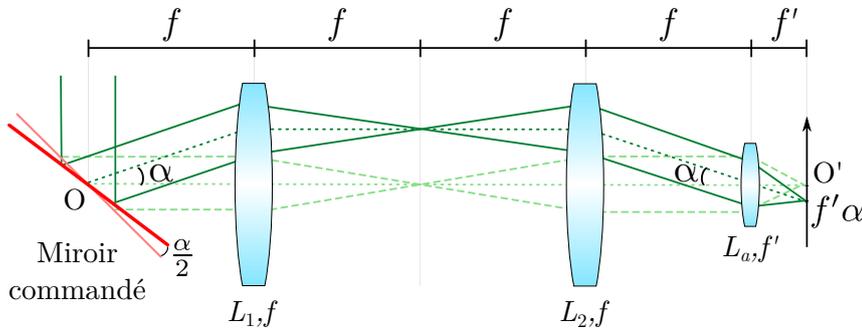


FIGURE A.5 – Illustration schématique du principe d'un montage $4f$ couplé à un miroir dont l'angle est pilotable. En imposant un angle $\alpha/2$ au miroir, le faisceau est dévié d'un angle α . Les deux lentilles de focale f permettent de rabattre le faisceau sur l'axe optique à une distance d'exactement $4f$ du miroir mobile. La tache de focalisation dans le plan focal de l'objectif est ainsi déplacée de $f'\alpha$, où f' est la distance focale de la lentille asphérique. Une fois convenablement aligné, ce dispositif permet de déplacer l'excitation et la collection simultanément. Adapté de [60].

A.3 Modélisation du spectre de PL

Les CNT à températures cryogéniques présentent une large diversité de forme de spectres et de facteur de qualité : des pics larges (figure A.6a), des raies fines avec des ailes de phonons très réduites (figure A.6b) ou des rebonds (figures 1.19 et 1.20). Pourtant, le profil d'émission attendu dans cette gamme de températures pour un exciton localisé au sein d'une structure unidimensionnelle est triangulaire comme sur la figure A.6a.

Le modèle résumé dans cette partie permet de justifier cette multiplicité de comportements par un modèle unique [28, 63].

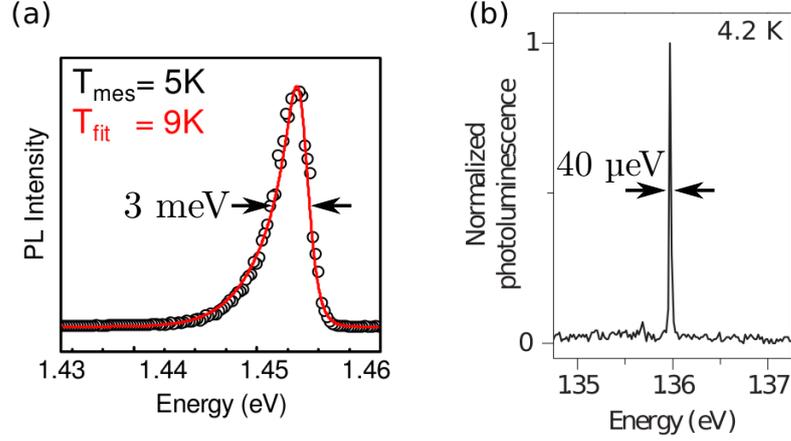


FIGURE A.6 – Spectres de photoluminescence de CNT à température cryogénique. (a) Tiré de [27]. (b) Tiré de [84]. Figure reprise de [63].

Le couplage entre les phonons et l’exciton est possible par l’intermédiaire d’un potentiel de déformation [271]. Le “passage” d’un phonon induit une déformation du réseau ce qui modifie localement et temporellement les niveaux électroniques. Le potentiel de couplage entre l’exciton et les phonons s’écrit :

$$U = D\nabla \cdot \mathbf{u} \quad (\text{A.3})$$

où D est le potentiel de déformation et \mathbf{u} le vecteur déplacement des atomes schématisé A.7. Dans une première approximation, seuls les phonons provoquant une PSB de l’ordre du meV sont pris en compte, c’est-à-dire les phonons acoustiques de faible vecteur d’onde \mathbf{k} . L’écart entre les vitesses du son dans les CNT ($v_{\text{son}} \approx 2 \times 10^4$ m/s) et dans le substrat ($v_{\text{son}}^{\text{SiO}_2} \approx 5 \times 10^3$ m/s dans la silice amorphe) est suffisamment grand pour négliger le couplage entre ces deux bains de phonons. Dans ce cadre, seuls le mode RBM et ceux d’élongation et de torsion des nanotubes peuvent se coupler aux porteurs de charges. Toutefois, le couplage avec le mode RBM n’est pas pris en compte car l’énergie de ses phonons est comprise entre 25 et 45 meV pour les chiralités étudiées. Les modes d’élongation et de torsion peuvent être assimilés à une branche acoustique effective de dispersion linéaire $\omega_k = v_{\text{son}}|k|$ dans la gamme d’énergie utilisée [63]. Après quantification, il est possible de définir le facteur de couplage suivant pour un mode k donné, un CNT de longueur l_{NT} et une densité linéique du tube ρ_l :

$$\hbar g_k = \sqrt{\frac{\hbar \omega_k}{2\rho_l l_{\text{NT}} v_{\text{son}}^2}} F(\omega_k) \quad \text{où } F \text{ est un facteur de forme.} \quad (\text{A.4})$$

F représente ici la valeur moyenne du potentiel de couplage sur la fonction d’onde de l’exciton. Pour des phonons acoustiques modélisés par des ondes planes, sans contrainte sur les modes possibles, ce facteur de forme peut être vu comme une gaussienne d’amplitude D et de demi-largeur $\frac{2}{\sigma}$ traduisant l’étendue de la fonction

d'onde de l'exciton dans l'espace réciproque (pointillés noirs sur la figure A.9. Qualitativement, puisque l'exciton s'étend sur une longueur σ , l'espace réciproque ne contient des vecteurs d'ondes que jusqu'à $1/\sigma$ ce qui explique la limite de couplage aux phonons acoustiques. À partir de ce formalisme, il est possible de donner une formule analytique de la réponse linéaire temporelle d'un nanotube de carbone [27] à une excitation et donc de déduire sa susceptibilité. Néanmoins, ce développement prédit des profils triangulaires pour des bains de phonons unidimensionnels [27].

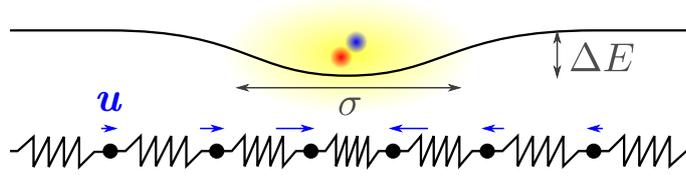


FIGURE A.7 – La présence d'un exciton modifie le réseau cristallin du CNT (représenté par une chaîne d'oscillateurs couplés) et crée un potentiel de couplage entre les porteurs de charge et les phonons acoustiques défini dans la formule A.3.

En réalité, tous les modes de phonons ne sont pas forcément autorisés. Il est possible de s'en rendre compte qualitativement en modélisant un CNT par une chaîne de masses séparées d'une distance a , couplées par des ressorts de raideur C_{cov} (représentant les liaisons covalentes) et liées à un support fixe par des ressorts de raideur C_{vdw} (représentant les liaisons de Van der Waals d'interaction avec le substrat) comme schématisé A.8.

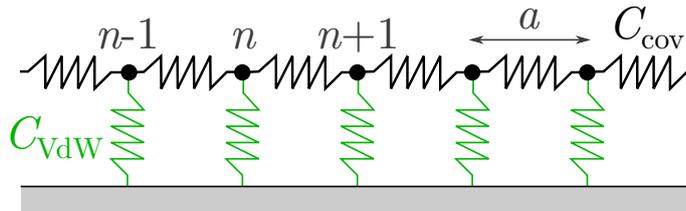


FIGURE A.8 – Modélisation d'un CNT avec une chaîne de masses couplées élastiquement par une raideur C_{cov} . Les masses interagissent aussi élastiquement par une raideur C_{vdw} avec le substrat pour simuler des liaisons de Van der Waals.

En posant l'équation fondamentale de la dynamique pour le déplacement u_n des mobiles n de masse $\rho_l a$, il vient :

$$\rho_l a \ddot{u}_n = C_{\text{cov}}(u_{n+1} - u_n) - C_{\text{cov}}(u_n - u_{n-1}) - C_{\text{vdw}} u_n \quad (\text{A.5})$$

En passant à la limite continue, l'équation A.5 équivaut à une équation de type Klein-Gordon :

$$v_{\text{son}}^2 \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} - \ddot{u} = \omega_c^2 u \quad \text{où } \omega_c = \sqrt{\frac{C_{\text{vdw}}}{\rho_l a}} \quad (\text{A.6})$$

Cette équation fait naturellement apparaître une pulsation de coupure ω_c .

Pour $C_{\text{vdw}} \approx 1 \text{ N/m}$ typique des liaisons de Van der Waals, la masse linéique $\rho_l \approx 1,8 \times 10^{-15} \text{ kg/m}$ et le paramètre $a \approx 246 \text{ pm}$ (voir partie 1.1.1.1), la pulsation de coupure des phonons vaut $\omega_c \approx 1 \text{ meV}$.

L'estimation de la pulsation de coupure correspond bien aux observations expérimentales : les minima locaux d'intensité des spectres figures 1.19 et 1.20 se trouvent bien à environ 1 meV de la ZPL. En prenant en compte cette pulsation de coupure, le facteur de forme devient :

$$F(\omega) = \begin{cases} 0 & \text{si } \omega < \omega_c \\ D e^{-\left(\frac{\sigma}{2v_{\text{son}}}\right)^2 (\omega - \omega_c)^2} \sqrt{1 - \left(\frac{\omega_c}{\omega}\right)^2} & \text{sinon.} \end{cases} \quad (\text{A.7})$$

Il est tracé figure A.9. Toutefois, les liaisons avec le substrat ne sont pas les seules à contribuer au facteur de forme. Plus généralement, toutes les liaisons avec le réseau cristallin peuvent y contribuer. Elles peuvent s'établir avec le polymère qui enveloppe le CNT ou avec des impuretés adsorbées à sa surface et elle ne sont pas forcément homogènes. Ces zones de liaisons ont pour effet de créer des barrières acoustiques [28] ce qui offre une grande variété de facteurs de forme possibles : par exemple deux barrières acoustiques constituent une cavité pour les phonons et une résonance dans le facteur de forme. Ce mécanisme explique les rebonds très prononcés parfois présents sur les PSB.

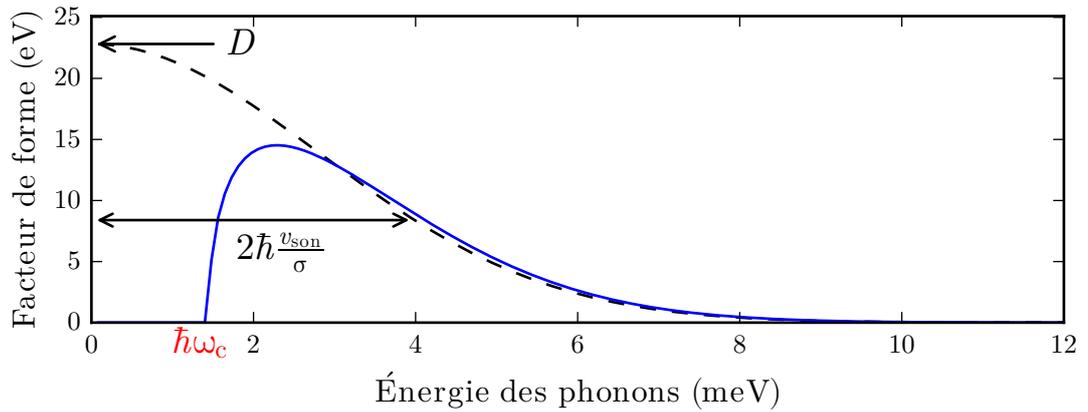


FIGURE A.9 – Facteur de forme typique avec (ligne bleue) et sans (pointillés noirs) pulsation de coupure ω_c .

Figure A.10, un unique ajustement a été réalisé conjointement sur trois spectres d'un même CNT à différentes températures en prenant comme paramètres les quatre températures, σ l'extension de la fonction d'onde de l'exciton, τ_{coh} le temps de cohérence de l'émission (qui revient à la largeur de la ZPL, $2\frac{\hbar}{\tau_{\text{coh}}}$), D le potentiel de déformation et ω_c la pulsation de coupure des phonons acoustiques. L'ajustement

implique une localisation de l'exciton sur $6,1 \pm 0,1$ nm et une pulsation de coupure des phonons à $1,42 \pm 0,02$ meV. Le facteur de forme déduit est celui tracé figure A.9. Le modèle renvoie des valeurs de températures locales plus élevées que la température de consigne comme attendu à cause de l'échauffement dû à l'excitation laser. Les températures obtenues par cet ajustement sont plus proches des températures mesurées sur le doigt froid (et sans doute plus réalistes) que celles données par la méthode détaillée dans la partie précédente.

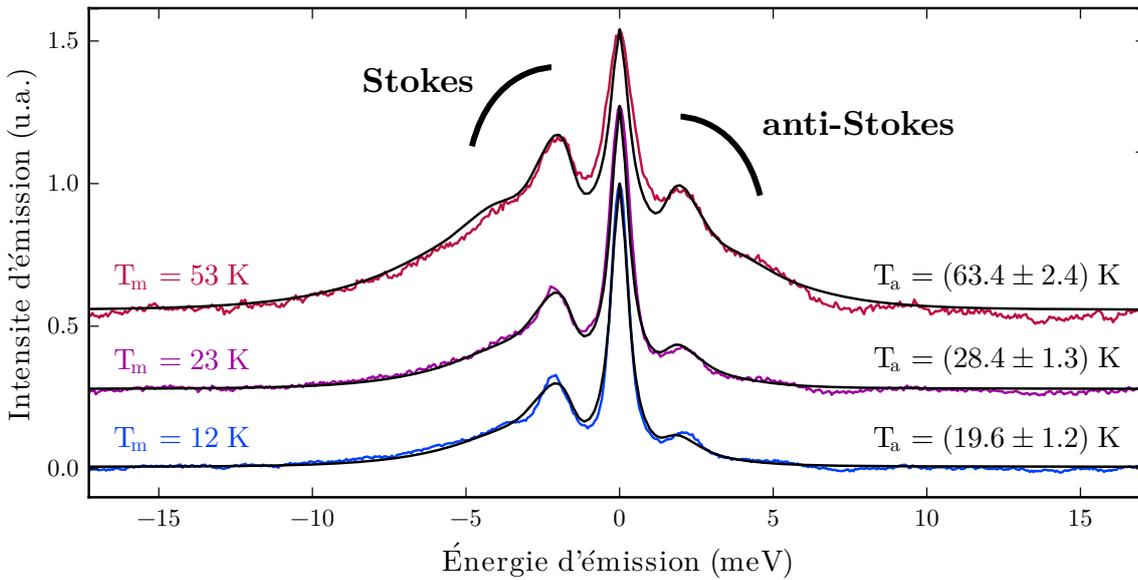


FIGURE A.10 – Ajustement simultané du modèle de couplage aux phonons à quatre spectres de photoluminescence d'un même CNT acquis à quatre températures différentes. T_m indique la température mesurée expérimentalement sur le doigt froid du cryostat et T_a celle donnée par l'ajustement.

L'interprétation de la diversité de spectres observés par la présence de barrières acoustiques montre que la largeur d'émission des CNT dépend directement de leur interaction avec l'environnement. Il est a priori possible d'optimiser le polymère qui sépare les CNT ou la matrice qui les enveloppe pour affiner la ZPL. Dans cette démarche, à la fois les CNT enveloppés de PFO-BPy ou de PFH-A dispersés dans une matrice de polystyrène donnent de bons résultats (largeurs fréquemment inférieures à 1 meV).

APPENDIX B : COUPLAGE ENTRE UN ÉMETTEUR ET UNE CAVITÉ

B.1 Analogie électrocinétique et couplage

Pour simplifier l'analyse du couplage d'un émetteur avec une cavité optique, une analogie est possible avec un circuit électronique (voir figure B.1). Dans ce développement, un seul mode de cavité est considéré et le couplage spatial entre ce mode et le dipôle est supposé parfait (le système est projeté dans l'axe du dipôle). Par contre, pour prendre en compte l'accord spectral, la transmission de la cavité et l'émission du dipôle sont centrées sur les pulsations ω_{cav} et $\omega_{\text{ém}}$ et ont les largeurs $\frac{\omega_{\text{cav}}}{Q_{\text{cav}}}$ et $\frac{\omega_{\text{ém}}}{Q_{\text{ém}}}$. D'après les relations 3.1 et 3.3, le courant I , la tension U et l'impédance Z peuvent être définis comme suit [272] :

I	U	Z
$-i\omega p$	$-E(r_0)$	$-i\omega\mu_0 G(r_0, r_0, \omega)$

Avec cette analogie, les pertes sont décrites par la partie réelle de Z c'est-à-dire par la partie imaginaire de $\omega\mu_0 G(r_0, r_0, \omega)$. Pour un dipôle en espace libre, la puissance rayonnée n'est pas réinjectée dans le système : Z est réel et est noté R_0 . D'après la formule 3.5, la résistance de l'espace libre R_0 vaut :

$$R_0 = \frac{\mu_0}{6\pi c} \omega_{\text{ém}}^2 \quad \text{où } \omega_{\text{ém}} \text{ est la pulsation de l'émetteur} \quad (\text{B.1})$$

Comme le moment dipolaire et le champ sont supposés parallèles, le dipôle peut être décrit en utilisant sa polarisabilité α : $p = \alpha\epsilon_0 E$. Cette polarisabilité est modélisée par la formule $\alpha = \frac{\alpha_0}{1 - \left(\frac{\omega}{\omega_{\text{ém}}}\right)^2 - i\frac{\omega}{\omega_{\text{ém}} Q_{\text{ém}}}}$ [147]. L'impédance $Z_{\text{ém}}$ de l'émetteur s'écrit :

$$Z_{\text{ém}} = \frac{i}{\omega\alpha\epsilon_0} = \frac{\omega_{\text{ém}}}{\alpha_0\epsilon_0} \left[\frac{1}{Q_{\text{ém}}} + i \left(\frac{\omega_{\text{ém}}}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_{\text{ém}}} \right) \right] \quad (\text{B.2})$$

Ainsi, l'émetteur est analogue à un résonateur RLC série [272] :

$R_{\text{ém}}$	$L_{\text{ém}}$	$C_{\text{ém}}$
$\frac{\omega_{\text{ém}}}{\alpha_0\epsilon_0 Q_{\text{ém}}}$	$\frac{1}{\alpha_0\epsilon_0}$	$\frac{\alpha_0\epsilon_0}{\omega_{\text{ém}}^2}$

D'après l'expression du tenseur de Green 3.7 du champ en cavité et en projetant sur le seul mode considéré (division par le volume de mode effectif V_{eff}), l'impédance Z_{cav} de la cavité s'écrit :

$$Z_{\text{cav}} = \frac{1}{\epsilon_0 V_{\text{cav}}} \frac{-i\omega}{\omega_{\text{cav}}^2 - \omega^2 - i\frac{\omega\omega_{\text{cav}}}{Q_{\text{cav}}}} = \frac{1}{\epsilon_0 \omega_{\text{cav}} V_{\text{cav}}} \left[\frac{1}{Q_{\text{cav}}} + i \left(\frac{\omega_{\text{cav}}}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_{\text{cav}}} \right) \right]^{-1} \quad (\text{B.3})$$

La cavité est analogue à un résonateur RLC en dérivation [272] :

R_{cav}	L_{cav}	C_{cav}
$\frac{Q_{\text{cav}}}{\epsilon_0 \omega_{\text{cav}} V_{\text{eff}}}$	$\frac{1}{\epsilon_0 \omega_{\text{cav}}^2 V_{\text{cav}}}$	$\epsilon_0 V_{\text{cav}}$

Le circuit équivalent de l'émetteur couplé en cavité est représenté figure B.1. L'énergie stockée dans l'émetteur se dissipe dans $R_0 + R_{\text{ém}} + R_{\text{cav}}$. Si le système n'est pas excité par un champ incident et qu'une certaine énergie est stockée dans le système, la loi des mailles donne l'équation sur ω suivante : $R_0 + Z_{\text{cav}}(\omega) + Z_{\text{ém}}(\omega) = 0$.

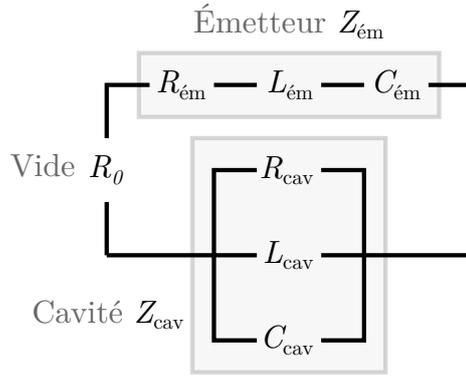


FIGURE B.1 – Circuit électrocinétique équivalent à un dipôle émetteur couplé à une cavité optique. L'émetteur est analogue à un oscillateur RLC série relaxant dans la résistance R_0 modélisant le vide ou dans un autre RLC en parallèle modélisant la cavité.

Quelques cas simples sont commentés en supposant la cavité résonante avec l'émetteur $\omega_{\text{cav}} = \omega_{\text{ém}} = \omega_0$.

- Si V_{cav} est très grand, l'impédance de la cavité est assimilable à un fil dans le circuit équivalent. C'est le cas de l'émetteur en espace libre.
- Si l'émetteur peut être considéré comme une perturbation du système, $R_{\text{ém}} \ll R_0, R_{\text{cav}}$ et le rapport de la dissipation dans la cavité par celle dans l'espace libre permet de retrouver le facteur de Purcell défini équation 3.13. Il s'écrit :

$$\frac{R_{\text{cav}}}{R_0} = \frac{3}{4\pi^2} Q_{\text{cav}} \frac{\lambda^3}{V_{\text{cav}}} = F_p \quad (\text{B.4})$$

- Si $R_0 \ll Z_{\text{ém}}, Z_{\text{cav}}, Z_{\text{cav}} + Z_{\text{ém}} = 0$ ce qui donne l'équation suivante :

$$\frac{\alpha_0}{\omega_0^2 V_{\text{cav}}} + \left[\frac{1}{Q_{\text{ém}}} + i \left(\frac{\omega_0}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_0} \right) \right] \left[\frac{1}{Q_{\text{cav}}} + i \left(\frac{\omega_0}{\omega} - \frac{\omega}{\omega_0} \right) \right] = 0 \quad (\text{B.5})$$

- Pour $\frac{\alpha_0}{\omega_0^2 V_{\text{cav}}} \ll \frac{1}{Q_{\text{ém}}}, \frac{1}{Q_{\text{cav}}}$, une seule solution existe $\omega \approx \omega_0$. L'émetteur apparaît comme une perturbation de la cavité, il s'agit du régime de couplage faible. L'émetteur se dissipe très vite dans la cavité, c'est le cadre d'application de l'équation B.4.
- Pour $\frac{\alpha_0}{\omega_0^2 V_{\text{cav}}} \gg \frac{1}{Q_{\text{ém}}}, \frac{1}{Q_{\text{cav}}}$ deux solutions existent $\omega \approx \omega_0 \pm g$ avec $g = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\alpha_0}{V_{\text{cav}}}}$. Il s'agit du régime de couplage fort entre la cavité et l'émetteur. L'énergie électromagnétique est échangée plusieurs fois entre l'émetteur et la cavité avant d'être dissipée¹.

Ce raisonnement classique permet d'identifier les deux régimes de couplage de l'émetteur en cavité mais il ne rend pas compte de la statistique particulière de l'émission d'une structure de taille atomique. Quelques éléments permettant de traduire ce modèle en un système quantique sont donnés dans la partie suivante.

B.2 Influence des phonons

Dans cette partie, le système à deux niveaux couplé à la cavité est habillé par des niveaux vibrationnels comme discuté lors de la description des ailes de phonons dans le chapitre 3. L'approche présentée ici est similaire à celle publiée dans l'article [39].

Polaron

$\hat{b}_{\mathbf{k}}$ et $\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger$ désignent respectivement les opérateurs d'annihilation et de création du mode de phonon d'énergie $\hbar\omega_{\mathbf{k}}$ et de vecteur d'onde \mathbf{k} . L'énergie totale des modes de phonons vaut $\hbar \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}$ et l'interaction entre l'exciton et les modes de phonons s'écrit $\hbar \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \sum_{\mathbf{k}} (g_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}} + g_{\mathbf{k}}^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger)$. Le hamiltonien du système devient [274] :

$$\mathcal{H} = \underbrace{\hbar\omega_{\text{ém}} \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \hbar\omega_{\text{cav}} \hat{a}^\dagger \hat{a} + i\hbar g (\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- - \hat{\sigma}_+ \hat{a})}_{\text{Jaynes-Cummings}} + \underbrace{\hbar \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} + \hbar \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \sum_{\mathbf{k}} (g_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}} + g_{\mathbf{k}}^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger)}_{\text{Fröhlich}} \quad (\text{B.6})$$

1. L'identification du couplage g avec la fréquence de Rabi $\sqrt{\frac{\mu^2 \omega_0}{2\epsilon_0 \hbar V_{\text{cav}}}}$ n'est pas immédiate. Il ne faut pas confondre la polarisabilité classique et l'élément de matrice quantique μ de la transition, $\langle \alpha_0 \rangle = 2 \frac{\omega_0}{\hbar} \mu^2$ (voir partie la partie 3.1.1.1 et [273]).

Le couplage entre l'exciton et le mode de phonon \mathbf{k} normalisé par l'énergie du mode $\hbar\omega_k$ est noté $\xi_k \equiv \frac{g_k}{\omega_k}$. Dans la limite continue, il est décrit par une densité spectrale de couplage $J(\omega) \equiv \pi \sum_{\mathbf{k}} |g_{\mathbf{k}}|^2 \delta(\omega - \omega_{\mathbf{k}})$ [275]. Dans le cas d'un exciton localisé sur une distance σ dont l'enveloppe de la fonction d'onde est supposé gaussienne, le couplage aux phonons via un potentiel de déformation (voir annexe A.3) se traduit par :

$$J(\omega) \propto \omega_c \left(\frac{\omega}{\omega_c} \right)^s \exp \left[-2 \left(\frac{\omega}{\omega_c} \right)^2 \right]$$

où $\omega_c = 2\frac{\omega_k}{k\sigma} = 2\frac{v_{\text{son}}}{\sigma}$ représente une pulsation de coupure. L'exciton ne se couple qu'aux modes de phonons dont la longueur d'onde est supérieure à la taille du piège dans lequel il est localisé (voir partie 2.1) : la déformation du réseau n'a pas une moyenne nulle sur σ . et s est la dimension du bain de phonon (dimension de la structure comportant le défaut émetteur). Par exemple, $s = 3$ pour les boîtes quantiques, $s = 2$ pour les matériaux monocouches (type TMDC) et $s = 1$ dans le cas des nanotubes de carbone.

En l'absence du hamiltonien d'interaction entre l'exciton et la cavité, ce nouveau hamiltonien serait diagonalisable en utilisant la transformation polaronique. Elle consiste à séparer les termes en $\hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_-$ et en $\hat{\sigma}_-\hat{\sigma}_+$ puis à les diagonaliser. En effet, les opérateurs $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ et $\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger$ forment le début d'un carré avec les termes $\omega_k \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}$ et $g_k \hat{b}_{\mathbf{k}} + g_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger$. Cette transformation se traduit par l'opérateur unitaire $U \equiv \hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- \otimes e^{-\Omega} + \hat{\sigma}_-\hat{\sigma}_+ \otimes \mathbb{1}$ avec $\Omega \equiv \sum_{\mathbf{k}} (\xi_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \xi_k \hat{b}_{\mathbf{k}})$. Les opérateurs $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ et $\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger$ sont transformés par l'opérateur de déplacement $e^{-\Omega}$ comme suit :

$$\begin{cases} e^{\Omega} \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{-\Omega} &= \hat{b}_{\mathbf{k}} - \xi_k^* \\ e^{\Omega} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger e^{-\Omega} &= \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \xi_k \end{cases} \quad (\text{B.7})$$

Cela permet de calculer celle de l'opérateur du nombre de phonons de mode \mathbf{k} , $\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}$:

$$e^{\Omega} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{-\Omega} = \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} - (\xi_k \hat{b}_{\mathbf{k}} + \xi_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger) + |\xi_k|^2 \quad (\text{B.8})$$

Pour résumer, l'application de la transformation unitaire U donne :

$$\begin{cases} U^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} U &= \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} + \hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- (-\xi_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \xi_k \hat{b}_{\mathbf{k}} + |\xi_k|^2) \\ U^\dagger \hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- (\xi_k \hat{b}_{\mathbf{k}} + \xi_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger) U &= \hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_- (\xi_k \hat{b}_{\mathbf{k}} + \xi_k^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - 2|\xi_k|^2) \\ U^\dagger \hat{\sigma}_\pm U &= \hat{\sigma}_\pm e^{\pm\Omega} \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

Après transformation U , le hamiltonien dû aux phonons comporte un terme $\omega_k \xi_k^2 \hat{\sigma}_+\hat{\sigma}_-$ caractéristique de la transformation polaronique. Par la suite, cette

constante redéfinit l'énergie de l'exciton :

$$\omega_{\text{ém},p} = \omega_{\text{ém}} - \sum_{\mathbf{k}} (\omega_{\mathbf{k}} |\xi_{\mathbf{k}}|^2) \quad (\text{B.10})$$

Le hamiltonien total après transformation U s'écrit² :

$$\begin{cases} \mathcal{H}_p \equiv U^\dagger \mathcal{H} U = \mathcal{H}_0 + V \\ \mathcal{H}_0 \equiv \hbar \omega_{\text{ém},p} \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- + \hbar \omega_{\text{cav}} \hat{a}^\dagger \hat{a} + \hbar \sum_{\mathbf{k}} \omega_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \\ V \equiv i\hbar g (\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- e^{-\Omega} - \hat{a} \hat{\sigma}_+ e^{\Omega}) \end{cases} \quad (\text{B.11})$$

Les lindbladiens deviennent : $\sqrt{\kappa} \hat{a}$, $\sqrt{\gamma} \hat{\sigma}_- e^{-\Omega}$ et $\sqrt{\gamma^*} \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-$.

Évolution des populations et efficacité

En représentation d'interaction, un opérateur A_I est lié à l'opérateur A_S en représentation de Schrödinger à partir de la relation :

$$A_I(t) = e^{i\frac{\mathcal{H}_0 t}{\hbar}} A_S e^{-i\frac{\mathcal{H}_0 t}{\hbar}} \quad (\text{B.12})$$

Les opérateurs clefs composant le hamiltonien s'expriment simplement avec les pulsations $\omega_{\text{ém}}$, ω_{cav} et δ :

$$\begin{cases} \hat{\sigma}_{-,I} = e^{-i\omega_{\text{ém}} t} \hat{\sigma}_- \\ \hat{a}_I = e^{-i\omega_{\text{cav}} t} \hat{a} \\ V_I = i\hbar g (\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- e^{-\Omega_I - i\delta t} - \hat{a} \hat{\sigma}_+ e^{\Omega_I + i\delta t}) \\ \Omega_I = \sum_{\mathbf{k}} (\xi_{\mathbf{k}}^* \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger e^{i\omega_{\mathbf{k}} t} - \xi_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{-i\omega_{\mathbf{k}} t}) \end{cases} \quad (\text{B.13})$$

L'équation d'évolution en interaction est la suivante :

$$\frac{d}{dt} \rho_I = \frac{1}{i\hbar} [V_I, \rho_I] + \sum_{j=1}^3 \mathcal{L}(\hat{c}_{j,I}) \rho_I \quad (\text{B.14})$$

Cela permet d'exprimer l'évolution de la population des photons dans la cavité $\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$:

$$\begin{aligned} \frac{d\langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle}{dt} &= -\frac{1}{i\hbar} \langle [V, \hat{a}^\dagger \hat{a}] \rangle + \text{Tr}(\sum_{j=1}^3 \mathcal{L}(\hat{c}_{j,I}) \hat{a}^\dagger \hat{a}) \\ &= -g \langle e^{-\Omega_I - i\delta t} [\hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_-, \hat{a}^\dagger \hat{a}] - e^{\Omega_I + i\delta t} [\hat{a} \hat{\sigma}_+, \hat{a}^\dagger \hat{a}] \rangle \\ &\quad - \frac{1}{2} \langle [\hat{a}^\dagger \hat{a}, \sqrt{\kappa} \hat{a}^\dagger] \sqrt{\kappa} \hat{a} \rangle - \frac{1}{2} \langle \sqrt{\kappa} \hat{a}^\dagger [\sqrt{\kappa} \hat{a}, \hat{a}^\dagger \hat{a}] \rangle \\ &= -g \langle e^{-\Omega_I - i\delta t} \hat{a}^\dagger [\hat{a}^\dagger, \hat{a}] \hat{\sigma}_- - e^{\Omega_I + i\delta t} \hat{a} [\hat{a}, \hat{a}^\dagger] \hat{\sigma}_+ \rangle - \kappa \langle \hat{a}^\dagger [\hat{a}, \hat{a}^\dagger] \hat{a} \rangle \\ &= g e^{-i\delta t} \langle e^{-\Omega_I} \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle + g e^{i\delta t} \langle e^{\Omega_I} \hat{a} \hat{\sigma}_+ \rangle - \kappa \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.15})$$

2. Par la suite, les grandeurs sont toujours exprimées dans la transformation polaronique et l'indice p est omis.

Un calcul similaire donne l'évolution de l'excitation de l'émetteur $\langle \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \rangle$:

$$\frac{d\langle \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \rangle}{dt} = -g e^{-i\delta t} \langle e^{-\Omega_I} \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle - g e^{i\delta t} \langle e^{\Omega_I} \hat{a} \hat{\sigma}_+ \rangle - \gamma \langle \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- \rangle \quad (\text{B.16})$$

Dans le cas 3D, il est possible de définir un couplage effectif $g_{\text{eff}} \equiv g \langle e^{-\Omega} \rangle$ en découplant la moyenne de l'opérateur de déplacement $e^{-\Omega}$ de celle des cohérences [276].

$$\langle e^{-\Omega} \rangle = \exp \left[-\frac{1}{2\pi} \int_0^\infty \frac{J(\omega)}{\omega^2} \coth \left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T} \right) d\omega \right] \quad (\text{B.17})$$

Toutefois dans le cas où $s = 1$, $\frac{J(\omega)}{\omega^2} \coth \left(\frac{\hbar\omega}{2k_B T} \right) \underset{\omega \rightarrow 0}{\sim} \frac{1}{\omega^2}$ donc $\langle e^{-\Omega_I} \rangle = 0$. Sous cette approximation, le couplage effectif serait nul dans le cas d'un bain de phonon unidimensionnel ce qui n'est manifestement pas le cas (voir la partie 5.2.2.3). Pour traiter le problème de façon plus générale, les moyennes des cohérences $\langle e^{-\Omega_I} \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle$ et $\langle e^{\Omega_I} \hat{a} \hat{\sigma}_+ \rangle$ sont exprimées en fonction des opérateurs $\hat{a}^\dagger \hat{a}$ et $\hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_-$ [39] :

$$\langle e^{-\Omega_I} \hat{a}^\dagger \hat{\sigma}_- \rangle = g \int_0^t d\tau e^{i\delta\tau} e^{-\frac{\gamma_{\text{tot}}}{2}(t-\tau)} \left(\text{Tr} \left(\rho_I(\tau) \hat{\sigma}_+ \hat{\sigma}_- e^{\Omega_I(\tau)} e^{-\Omega_I(t)} \right) - \text{Tr} \left(\rho_I(\tau) \hat{a}^\dagger \hat{a} e^{-\Omega_I(t)} e^{\Omega_I(\tau)} \right) \right) \quad (\text{B.18})$$

Cette expression se simplifie en supposant que le bain de phonons n'est que peu modifié par l'exciton [277, 39]. La trace Tr est appliquée séparément à l'exciton couplé à la cavité (Tr_{JC}) et au bain de phonon à l'équilibre thermique (Tr_{ph}) :

$$\text{Tr} \left(\rho_I(\tau) \hat{a}^\dagger \hat{a} e^{-\Omega_I(t)} e^{\Omega_I(\tau)} \right) \approx \text{Tr}_{\text{JC}} \left(\rho_{\text{JC},I}(\tau) \hat{a}^\dagger \hat{a} \right) \underbrace{\text{Tr}_{\text{ph}} \left(\rho_{\text{ph},I}(\tau) e^{-\Omega_I(\tau)} e^{\Omega_I(t)} \right)}_{K(t-\tau)} \quad (\text{B.19})$$

Or les spectres d'émission $S_{\text{émi}}$ et d'absorption S_{abs} s'expriment en fonction du noyau des phonons $K(t) \equiv \langle e^{-\Omega_I(0)} e^{\Omega_I(t)} \rangle$ [274, 278] :

$$\begin{cases} S_{\text{abs}} &= \int_0^\infty dt e^{i\delta t} e^{-\frac{\gamma+\gamma^*}{2}t} K(t) \\ S_{\text{émi}} &= \int_0^\infty dt e^{i\delta t} e^{-\frac{\gamma+\gamma^*}{2}t} K^*(t) \end{cases} \quad (\text{B.20})$$

Ainsi, en utilisant l'expression 3.38 et en notant $\tilde{S}_{\text{émi}}(\delta)$ et $\tilde{S}_{\text{abs}}(\delta)$ les spectres d'émission et d'absorption convolués par le profil lorentzien de la cavité, l'efficacité vaut [39] :

$$\beta = \frac{g^2 \kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\delta)}{g^2 \left(\kappa \tilde{S}_{\text{émi}}(\delta) + \gamma \tilde{S}_{\text{abs}}(\delta) \right) + \gamma \kappa} \quad (\text{B.21})$$

Schématiquement, le polaron (resp. la cavité) peut soit se désexciter vers la cavité (resp. le polaron) avec une probabilité $p_{\text{pol} \rightarrow \text{cav}}$ (resp. $p_{\text{cav} \rightarrow \text{pol}}$) soit dans le vide comme décrit dans la figure B.2 avec $p_{\text{pol} \rightarrow \text{cav}}$ et $p_{\text{cav} \rightarrow \text{pol}}$ telles que :

$$p_{\text{cav} \rightarrow \text{pol}} = \frac{g^2 \tilde{S}_{\text{abs}}}{\kappa + g^2 \tilde{S}_{\text{abs}}} \quad \text{et} \quad p_{\text{pol} \rightarrow \text{cav}} = \frac{g^2 \tilde{S}_{\text{émi}}}{\gamma + g^2 \tilde{S}_{\text{émi}}} \quad (\text{B.22})$$

Ce point de vue permet de retrouver facilement la formule de l'efficacité B.21 en sommant sur tous les échanges possibles de l'excitation entre le polaron et la cavité.

$$\beta = p_{\text{ém} \rightarrow \text{dét}} = p_{\text{ém} \rightarrow \text{cav}} \left(\sum_l (p_{\text{cav} \rightarrow \text{ém}} p_{\text{ém} \rightarrow \text{cav}})^l \right) \left(\underbrace{1 - p_{\text{cav} \rightarrow \text{ém}}}_{p_{\text{cav} \rightarrow \text{dét}}} \right) \quad (\text{B.23})$$

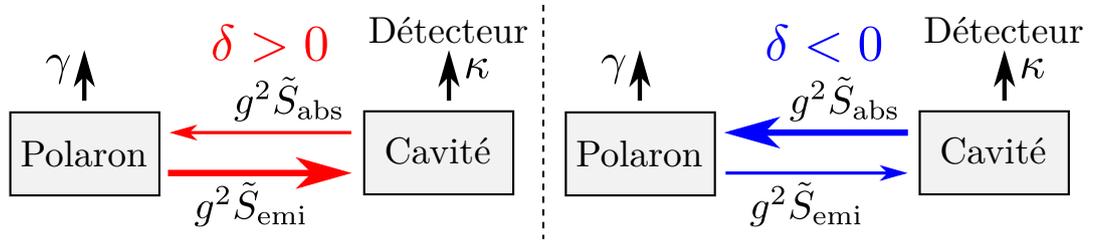


FIGURE B.2 – Asymétrie d'absorption et d'émission dans les échanges entre le polaron et la cavité optique.

L'asymétrie des échanges entre le polaron et la cavité est surtout marquée à basse température. En effet, peu de phonons sont disponibles dans la structure ce qui rend plus probable l'absorption (resp. l'émission) d'un photon d'énergie supérieure (resp. inférieure) à celle de la bande interdite. Ce phénomène induit une distorsion de l'efficacité d'émission : les photons décalés vers le bleu (tels que $\delta > 0$) sont plus facilement réabsorbés tandis que ceux décalés vers le rouge ($\delta < 0$) sont stockés dans la cavité. Ainsi l'efficacité augmente plus rapidement avec le couplage dans le cas d'un désaccord négatif. Un photon émis à une énergie inférieure à celle de l'énergie de l'exciton a suffisamment peu de chance d'être réabsorbé dans le cas d'un bain de phonon unidimensionnel que l'efficacité peut dépasser la limite intrinsèque $\beta_{g \rightarrow \infty}(\delta = 0) = \frac{\kappa}{\kappa + \gamma}$. Il est aussi possible de s'affranchir de cette limite dans le cas d'autres émetteurs mais cela nécessite l'utilisation d'une cavité biréfringente et donc un contrôle de la polarisation dans le dispositif [279].

APPENDIX C : MICRO-CAVITÉ FIBRÉE

C.1 Usinage du micro-miroir

C.1.1 Dispositif expérimental

L'ablation laser repose sur un processus complexe de sublimation/fusion de la silice composant la fibre optique. Pour un meilleur contrôle de l'ablation en injectant le minimum d'énergie dans le système, la longueur d'onde λ_{CO_2} du laser d'usinage est choisie à $10,6 \mu\text{m}$ proche d'un pic d'absorption de la silice.

Le dispositif d'ablation est présenté figure C.1. Le laser CO_2 est focalisé à proximité de l'extrémité de la fibre et la durée d'exposition est imposée par deux obturateurs rapides. Pour éviter l'apparition d'une onde stationnaire et donc des variations importantes de l'intensité à la surface de la fibre en fonction de la position du point focal, la polarisation du laser CO_2 est rendue circulaire par un polariseur et une lame $\lambda/4$. Un interféromètre de Mirau est utilisé pour caractériser l'état de surface de la fibre après chaque impact du laser CO_2 et éventuellement de corriger une erreur de centrage [280]. Le principe de cette mesure est décrit succinctement partie 3.2.2.1.

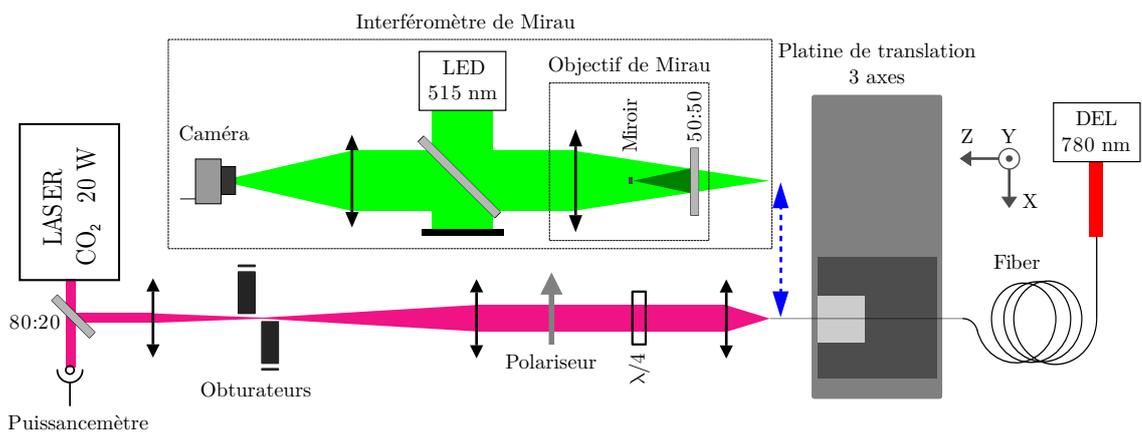


FIGURE C.1 – Schéma du dispositif d'ablation laser. La fibre à usiner est placée sur une plateforme de translation 3 axes de résolution micrométrique permettant d'alternier entre l'ablation laser et le contrôle de la surface par interféromètre de Mirau. Adapté de [281].

Dans le groupe de Jakob Reichel, ce dispositif est utilisé pour fabriquer des micro-miroirs avec des rayons de courbure de plusieurs centaines de micromètres

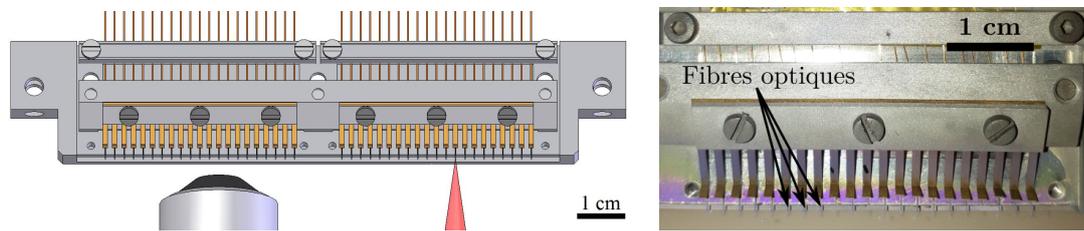


FIGURE C.2 – Support des fibres usinées. Les fibres sont appuyées contre une rainure par des lames en chrysocale et fixées solidement au support par une barre métallique revêtue de Kapton. L'objectif de Mirau qui permet de vérifier l'état de surface et le faisceau laser focalisé sur l'extrémité d'une fibre sont représentés sur le schéma de gauche (tiré de [280]). Les irisations visibles sur la photographie de droite proviennent des couches diélectriques déposées sur les fibres.

[282, 280, 166, 283]. Pour façonner la dépression concave à l'extrémité de la fibre, le laser CO_2 est focalisé à plusieurs longueurs de Rayleigh de la surface. Puis de multiples tirs laser agencés selon un schéma précis creusent progressivement la fibre. Une centaine de tirs d'une durée d'environ 10 ms sont envoyés à une puissance d'environ 2 W. Une de ces fibres¹ d'environ $50\ \mu\text{m}$ de rayon de courbure a été utilisée lors de tests préliminaires ou de calibrations [282].

Le dispositif C.1 a été interfacé sous Python et semi-automatisé pour autoriser la fabrication de micro-miroirs à la chaîne [280]. Des supports, représentés figure C.2, ont aussi été conçus dans ce but [280, 166]. Pour éviter que des particules volatiles provenant du décollement des couches diélectriques ne viennent polluer les miroirs, ces supports doivent être sablés avant utilisation. Le processus sublimation/fusion de la silice étant non-linéaire et les conditions de bord ayant une influence prépondérante dans la dissipation de la chaleur, il est difficile d'isoler un jeu optimal de paramètres d'usinage. Un algorithme d'apprentissage automatique a été récemment mis en place pour converger plus rapidement vers la géométrie du micro-miroir désiré [283].

C.1.2 Défauts d'usinage

Il arrive que la silice sublimée lors des impacts laser se redépose à proximité de la zone ciblée. Ce phénomène varie considérablement avec les paramètres d'usinage. Il est mis en relief sur des lames de verre figure C.3 par Torben Pöpplau, un collègue doctorant du groupe de Jakob Reichel.

1. Merci à Benjamin Besga pour cette fibre dont la durée de vie dépasse maintenant plusieurs thèses.

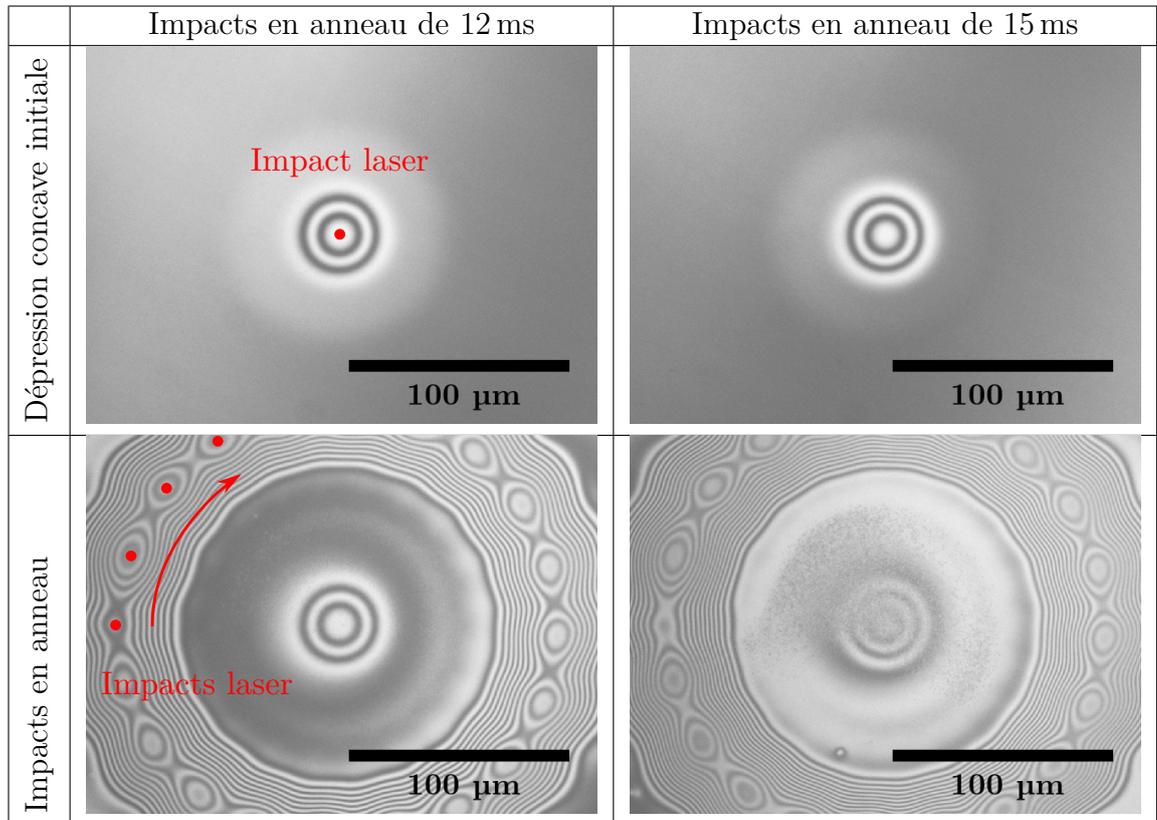


FIGURE C.3 – Image par interférométrie de Mirau d’une lame de verre usinée par ablation laser. Dans les deux cas (colonnes de gauche et de droite), chaque dépression concave a été créée par un impact unique sur un substrat plan puis entourée d’un anneau de 20 impacts laser de géométrie comparable à ceux utilisés pour le chanfrein de la fibre partie 3.2.2.1. À gauche la durée des impacts pour l’anneau a été fixée à 12 ms et à droite à 15 ms pour une puissance de 1,8 W. La diminution de contraste au niveau de la dépression concave correspond à une augmentation de la rugosité de la surface. Crédits : T. Pöplau, LKB-ENS.

Pour des tirs de laser CO_2 trop intenses ou trop longs, un ‘duvet’ de silice cristalline peut aussi se former sur la surface usinée [284]. Ce dépôt est composé de nano-cristaux de cristobalite (voir figure C.4), une phase métastable de la silice dont la température de fusion est très supérieure à celle de la silice amorphe. Il n’est donc plus possible de lisser à nouveau la surface en la faisant fondre localement par des tirs supplémentaires.

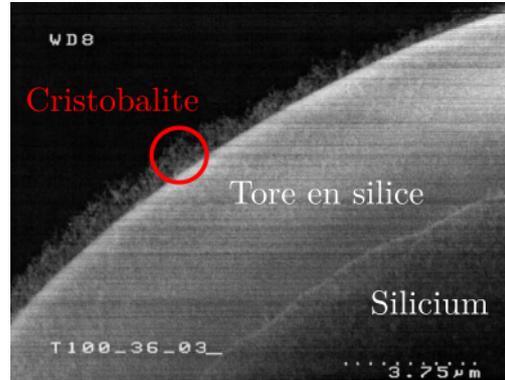


FIGURE C.4 – Image de microscopie électronique en balayage d’un micro-tore de silice obtenu par ablation laser d’une couche de silice sur silicium. Le duvet à la surface du micro-tore est composé de nano-cristaux de cristobalite, une phase de la silice métastable à température ambiante. Crédits : J. Verbert, CEA-Grenoble.

C.2 Mesure de la finesse de la micro-cavité

Pour mesurer la finesse réelle sans vibration, la mesure doit être suffisamment rapide ou modéliser ces vibrations et les prendre en compte dans une étude statistique. Comme point de repère, d’après le chapitre 4 les vibrations ne dépassent pas 10 nm d’amplitude pour une période de 2 ms dans une enceinte sous vide, cela équivaut à une vitesse maximale de 30 $\mu\text{m/s}$. Un FSR typique est de l’ordre de 160 nm ce qui donne une largeur de pic de transmission de 0,03 nm pour une finesse de 6000.

Pour le mode $p = 6$, un déplacement spatial de 30 $\mu\text{m/s}$ équivaut à un déplacement spectral de la résonance de 1×10^4 nm/s. Ainsi, pour une finesse de 6000, l’élargissement dû aux vibrations devient comparable à la largeur du pic de transmission si la mesure dure 3 μs .

C.2.1 Rampe rapide

Une rampe de tension est imposée à un nano-positionneur inertiel ANPx51/RES Attocube permettant de déplacer le micro-miroir sur une grande plage. L’agencement mécanique de la cavité est détaillé sur la figure 4.2 du chapitre 4. Pour estimer la finesse par cette méthode, la rampe doit balayer un FSR et donc une distance de $\lambda/2$. Le signal en sortie de la photodiode est une intensité de transmission en fonction du temps. Un signal typique est présenté figure C.5. La FWHM du pic de transmission et le FSR sont mesurés sous forme de durées et sont notés respectivement δt et Δt . La finesse vaut :

$$\mathcal{F} = \frac{\Delta t}{\delta t} \quad (\text{C.1})$$

La gamme des rampes de tensions appliquées s’étend jusqu’à 6 kV/s ce qui correspond à une vitesse de 300 $\mu\text{m/s}$ (10 fois plus élevée que les vibrations).

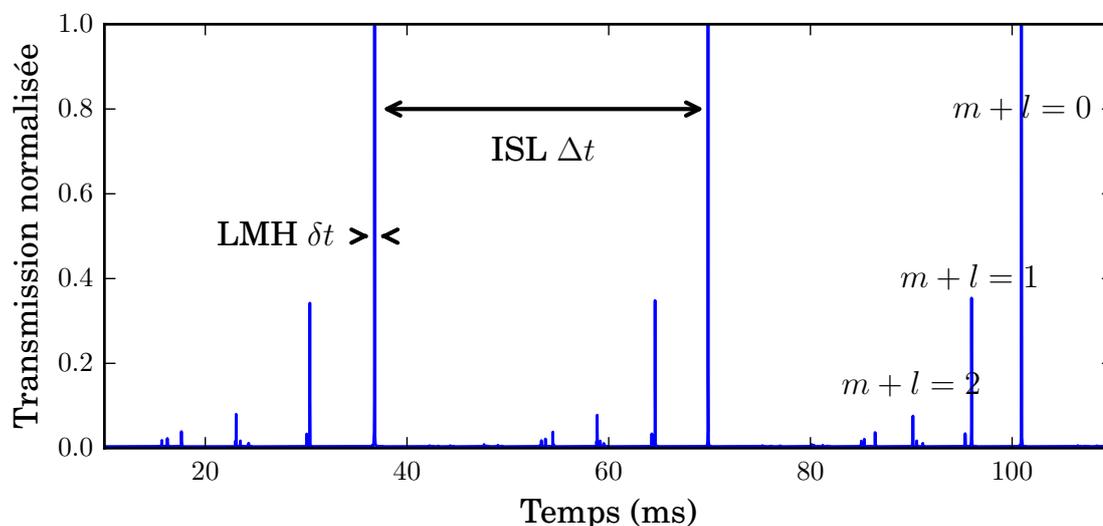


FIGURE C.5 – Signal de transmission d’un laser à travers une cavité optique dont la longueur varie avec une vitesse constante. L’excitation provient du laser Ti :Sa accordé à 900 nm dans la bande de réflexion de la cavité. Le micro-miroir utilisé, fabriqué par B. Besga, a un rayon de courbure de 50 μm et sa bande de réflexion s’étend de 840 à 980 nm.

Cette mesure de la finesse est pratique car elle demande peu de traitement puisque le FSR et la FWHM sont mesurés simultanément. Néanmoins, elle comporte quelques inconvénients :

- La vitesse n’est pas constante sur toute la durée de l’acquisition (la durée du FSR varie comme détaillé dans l’annexe D.1.2). Cela implique une erreur sur la finesse difficile à estimer.
- L’échantillonnage maximal est de 2 MHz ce qui limite la résolution du pic de transmission à 6 points pour une finesse de 6000.
- Elle est inutilisable à température cryogénique car l’amplitude maximale de déplacement du nano-positionneur ne permet pas de parcourir $\lambda/2$.

En pratique cette méthode n’est plus utilisée que pour estimer de basses finesstes (pour étalonner la finesse lors d’une mesure d’amplitude de vibration par exemple, voir partie 4.1.2.1). Pour s’affranchir des difficultés que présente cette méthode, il suffit de dissocier la mesure du FSR de celle de la FWHM.

C.2.2 Modulation sinusoïdale rapide

L’analyse spectrométrique de la transmission de la cavité excitée en lampe blanche donne accès au FSR (voir figure 3.29). Pour mesurer la largeur du pic de transmission, la cavité est ajustée à résonance avec la diode laser à 1310 nm. Puis,

la longueur de cavité est modulée sinusoidalement avec une amplitude inférieure à un FSR. La modulation est appliquée à l'aide de l'actionneur piézoélectrique rapide² décrit dans l'annexe D.2.1. La longueur d'onde de résonance de la cavité s'écrit $\lambda_{DL} + a_m \sin(2\pi f_m t)$ où a_m est l'amplitude spectrale de modulation. Un signal typique de transmission en sortie de la photodiode est tracé figure C.6.

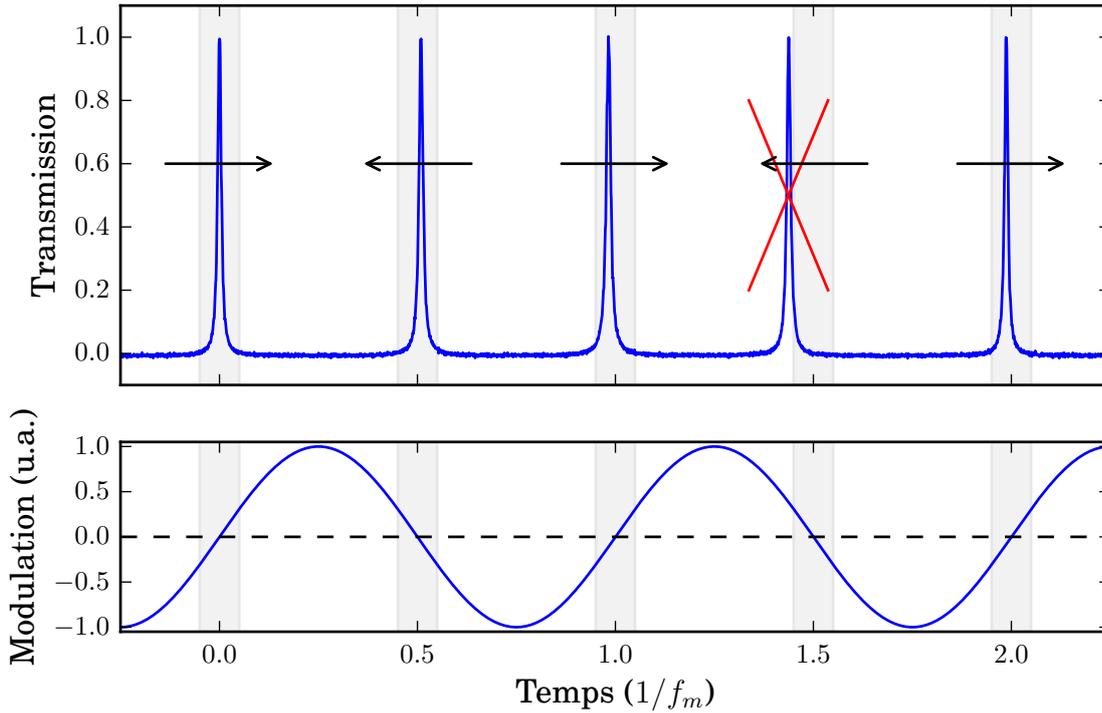


FIGURE C.6 – Signal de transmission d'une cavité optique excitée par la diode laser à 1310 nm dont la longueur est modulée à la fréquence $f_m = 600$ Hz. Les flèches noires représentent le passage du pic de cavité sur le laser (parties croissantes et décroissantes de la modulation sinusoïdale). Les zones grisées représentent les parties linéaires de la modulation sinusoïdale à 5% près. La FWHM du quatrième pic n'est pas prise en compte car il est en dehors de la zone linéaire.

La cavité est résonante avec la diode laser toutes les demi-périodes (à l'aller et au retour) comme schématisé figure 3.45(b). La largeur d'un pic de transmission est alors associée à une durée δt comme précédemment. Toutefois cette durée est évaluée plus précisément par cette méthode car elle peut être moyennée sur plusieurs milliers de mesures. Tant que la cavité arrive à résonance avec la diode laser lorsque la vitesse de modulation est maximale, la FWHM s'écrit :

$$\Delta\lambda = 2\pi f_m a_m \delta t \quad (\text{C.2})$$

2. P-111.01T PICA PhysikInstrumente

Si un pic de transmission est en dehors d'une zone où la vitesse de modulation peut être considérée comme constante, sa FWHM n'est pas prise en compte dans la moyenne comme c'est le cas pour le quatrième pic figure C.6.

Pour mesurer précisément l'amplitude de modulation a_m la cavité est excitée en lumière blanche. Un spectre comme ceux présentés figure C.7 est acquis en intégrant pendant une durée longue devant la période de modulation. Qualitativement, la cavité passe plus de temps à proximité des extrema de la modulation, le spectre présente donc des pics à $\lambda_{DL} \pm a_m$. L'écart entre les deux maxima du spectre figure C.7 donne donc environ deux fois la modulation a_m . Pour une mesure plus précise, le spectre S est ajusté par la formule suivante :

$$S(\lambda) = S_0 \Re \left[\frac{1}{\sqrt{\left(\frac{\Delta\lambda_{\text{vib}}}{2} + i(\lambda - \lambda_{DL})\right)^2 + a_m^2}} \right] \quad (\text{C.3})$$

où $\Delta\lambda_{\text{vib}}$ est la FWHM du pic de transmission élargie par les vibrations. Cette formule traduit la transmission d'une lorentzienne subissant une modulation sinusoïdale moyennée dans le temps.

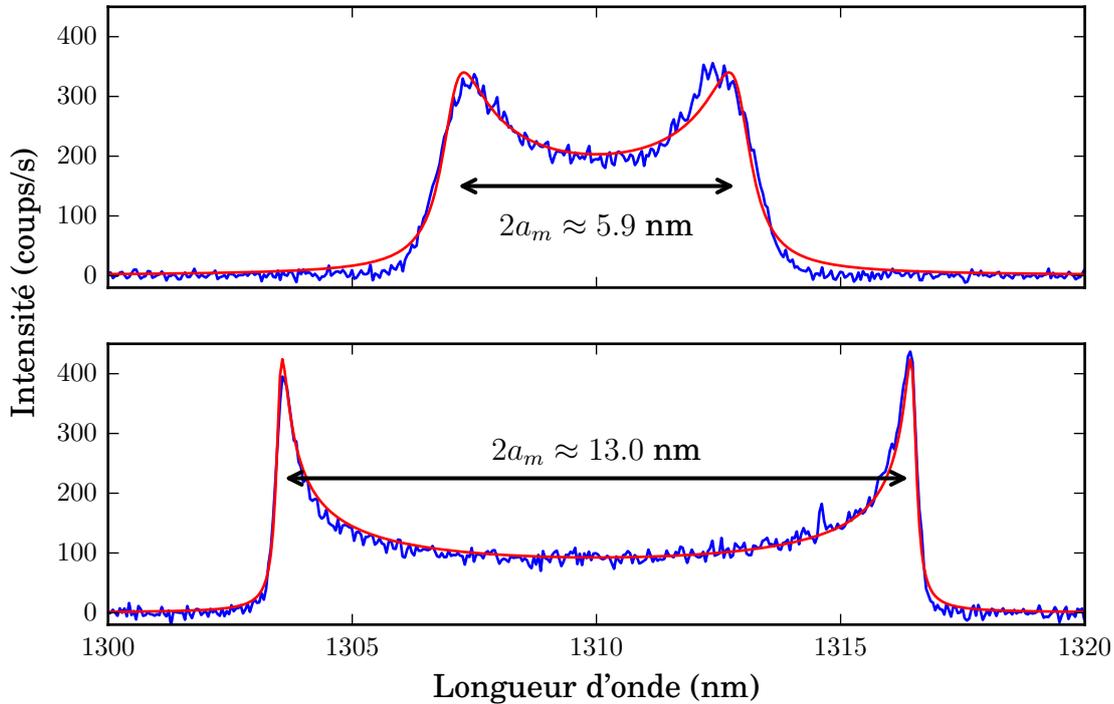


FIGURE C.7 – Spectres de transmission en lumière blanche de la cavité modulée (en bleu). L’ajustement (en rouge) donne l’amplitude spectrale de modulation a_m . **En haut** : Réalisé avec le micro-miroir n°55/84 pour un FSR de 164 nm (mode 7 à 1310 nm) en imposant une tension sinusoïdale à une fréquence $f_m = 600$ Hz. **En bas** : Réalisé avec le micro-miroir 14/84 pour un FSR de 187 nm (mode 6 à 1310 nm) toujours à 600 Hz.

Pour le micro-miroir n°55/84, l’amplitude de modulation spectrale est de 2,9 nm pour une fréquence de 600 Hz, la vitesse de déplacement spectral est donc de $1,1 \times 10^4$ nm/s. Elle est comparable à la borne supérieure des vitesses de vibrations définie en introduction de cette partie 3.2.3.1, dans un cas pessimiste³ une finesse de 6000 serait estimée à environ 3000.

La finesse de la cavité formée par le micro-miroir n°55/84 et un miroir plan avec un dépôt de 100 nm de PS est de 769 ± 12 nm. Elle est quasiment un ordre de grandeur plus basse que la finesse calculée figure 3.37. Pour répondre à ce problème, un test systématique des micro-miroirs a été mis en place pour mesurer la finesse réelle avant une utilisation dans le dispositif d’émetteur en cavité. Cette mesure en amont utilise la technique abordée dans la partie suivante. En outre, des explications à cette chute de finesse sont proposées dans la partie 3.2.3.2 consacrée aux pertes sèches.

3. Lors de ces mesures la vitesse des vibrations spatiales était réduite à moins de $2 \mu\text{m/s}$ soit moins de 1×10^3 nm/s spectralement (voir la partie 4.2.2.1).

C.2.3 Modulation triangulaire lente

Pour effectuer une mesure préliminaire de la finesse atteinte par une cavité formée par un micro-miroir et un miroir plan sans dépôt, un dispositif annexe (en dehors de l'enceinte à vide du cryostat) a été conçu par Antoine Borel. Cela permet de vérifier si un micro-miroir ne présente pas d'imperfections majeures avant de l'utiliser dans le cadre d'expériences de CQED.

Ce montage test a été isolé autant que possible des vibrations mais elles restent nettement plus importantes⁴ que dans l'enceinte sous vide du cryostat. Par conséquent, il est plus délicat de s'en affranchir. C'est pourquoi, cette mesure de finesse repose sur une étude statistique et des simulations plutôt qu'une mesure rapide. Comme schématisé figure 3.45(c), la longueur de cavité est modulée par un signal triangulaire d'amplitude suffisante pour balayer un FSR. La démarche est celle de la méthode C.2.1 associée à une étude statistique. Les distributions des durées Δt des FSR et δt des FWHM sont comparées à des simulations prenant en compte une modélisation des vibrations (voir la partie 4.1.2.1). Ces distributions ont été tracées pour le micro-miroir n°14/84 figure C.8. Pour cette cavité (sans dépôt de PS), les distributions mesurées sont très proches de la simulation calculée pour la finesse théorique. Cette finesse est de 6280 pour une longueur d'onde d'excitation de 1500 nm.

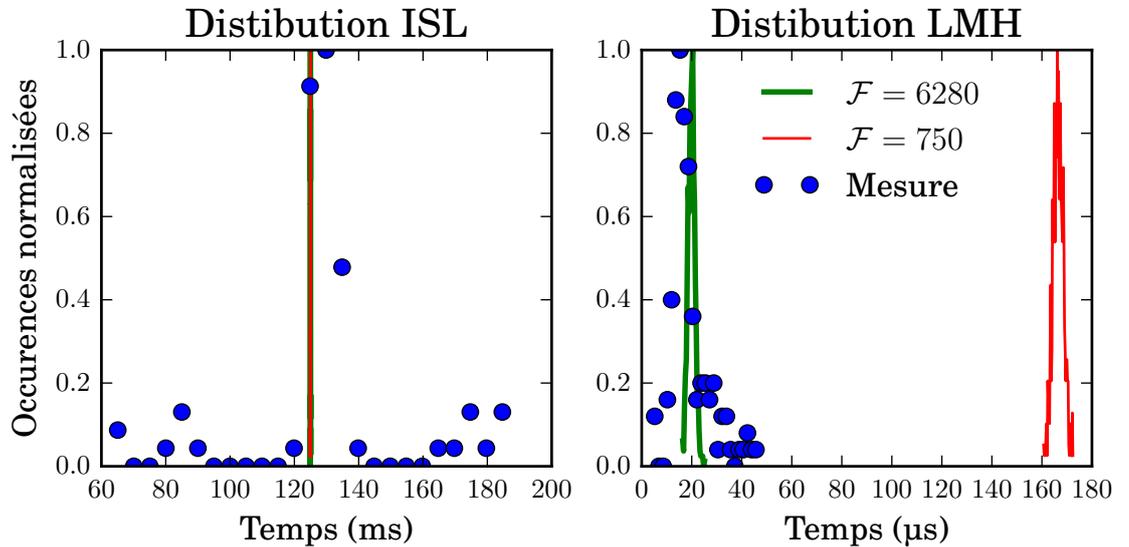


FIGURE C.8 – Distribution du FSR et de la FWHM des pics de transmission pour la cavité formée par un miroir plan sans dépôt et le micro-miroir 14/84 (points bleus). Les distributions simulées à partir des vibrations mesurées pour des finesesses de 6280 (ligne verte) et de 750 (ligne rouge).

La finesse de la cavité formée par le micro-miroir n°14/84 et le miroir plan avec

4. Plus de 30 nm d'amplitude spatiale, pour 10 nm dans le pire des cas sous vide.

un dépôt de 100 nm de PS a été évaluée à 1800 par la méthode C.2.2 sur le dispositif d'émetteur en cavité. Il y a plus d'un facteur 3 entre les deux estimations. Soit le dépôt de l'échantillon influe nettement sur les pertes de cavité, soit le micro-miroir a été abîmé pendant le transfert dans l'enceinte à vide. Ce problème est abordé partie 3.2.3.2.

C.3 Collections du mode de cavité

Une portion de la lumière est extraite de la micro-cavité grâce aux pertes utiles définies équation 3.74. Cependant entre l'arrière des miroirs et l'extérieur de l'enceinte du cryostat contenant le dispositif de CQED, toute l'intensité n'est pas collectée. Côté miroir plan, le mode doit être collimaté pour être envoyé vers les instruments de mesure. Coté fibre, un bon recouvrement entre le mode de cavité et le mode de la fibre usinée est nécessaire pour que l'intensité transmise à travers le micro-miroir se propage dans la fibre. Ces efficacités de collection sont quantifiées dans les parties suivantes.

C.3.1 par le miroir plan

D'après la partie 3.2.1.1, le mode de cavité a un angle⁵ de divergence $\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0} = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi z_R}}$.

Pour le mode $p = 5$, $\lambda = 1310$ nm et le micro-miroir n°55/84, la distance de Rayleigh $z_R = \sqrt{L_{\text{FSR}} (\mathcal{R} - L_{\text{air}})}$ vaut environ 6,2 μm et la largeur du mode $w_0 = \sqrt{\frac{\lambda z_R}{\pi}}$ vaut 1,6 μm . Cela donne $\theta \approx 14,8^\circ$.

Or, pour des raisons d'encombrement, la lentille de collection asphérique 354120C amsTechnologies placée derrière le miroir plan (voir la partie E.2) possède une ouverture numérique de 0,15 et donc une ouverture angulaire de $\theta_{\text{max}} = 8,6^\circ$. L'efficacité de collection η_c se déduit de la formule 3.75 :

$$\eta_c = 1 - \exp\left(-2\left(\frac{\theta_{\text{max}}}{\theta}\right)^2\right) \quad (\text{C.4})$$

Pour limiter les pertes, une lentille de correction plan convexe 67-457 Edmund Optics a été accolée à la surface arrière du cryostat comme expliqué dans la partie E.2. La lentille a été choisie telle que son centre de courbure corresponde à la position de la cavité optique : la divergence du mode devient $\theta_c = \theta/n$ où n est l'indice de réfraction du substrat.

Pour le mode $p = 5$, $\lambda = 1310$ nm et le micro-miroir n°55/84, 49% de l'intensité transmise est collectée sans lentille de correction. L'efficacité de collection passe à

5. Défini comme le demi-angle du cône de divergence.

78% avec la lentille de correction.

Tous les dioptries en jeu ont un revêtement anti-réflexion ($R < 0,7\%$) sauf la fenêtre de sortie du cryostat ($R \sim 4\%$). Ainsi, l'efficacité de collection du mode 5 par l'arrière du miroir plan est d'environ 70%.

La cavité optique est légèrement asymétrique à cause du dépôt de PS sur le miroir plan. L'intensité transmise à travers ce dernier est supérieure à 30% et vaut en théorie 40% ($\frac{T_2}{T_1+T_2}$ pour les valeur données partie 3.2.3.2) de l'intensité transmise totale. Ainsi, entre 20% et 30% de l'intensité du mode 5 sont collectés par l'arrière du miroir plan.

C.3.2 par la fibre usinée

Dans le cas d'une fibre monomode⁶, l'intensité collectée à travers le micro-miroir dépend du recouvrement entre le mode confiné de la fibre et celui de la cavité [285]. Ce recouvrement dépend des largeurs minimales des modes w_0 pour la cavité et w_f pour la fibre et de l'écart entre les positions pour lesquelles ces largeurs sont atteintes. Ces grandeurs sont schématisées sur la figure C.9. w_f est en retrait de z_f de l'extrémité de la fibre car la dépression concave augmente la divergence du mode à sa sortie. En effet, après la dépression concave, le front d'onde a acquis un rayon de courbure $R_f = \frac{\mathcal{R}}{n_f - 1}$ où \mathcal{R} est le rayon de courbure de la dépression concave et n_f l'indice de réfraction de la fibre. Ainsi, l'écart entre les deux modes est de $L_{\text{air}} + z_f$.

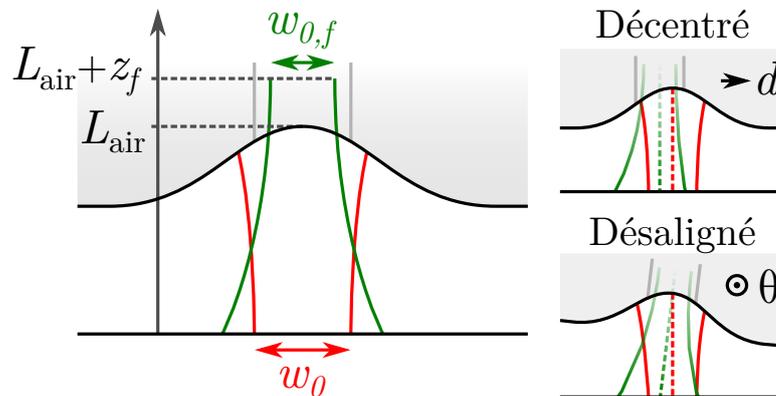


FIGURE C.9 – **À gauche** : Schéma du recouvrement entre le mode en sortie de la fibre optique (en vert) et le mode de cavité (en rouge). **À droite** : Ce recouvrement est détérioré si le centre de la dépression concave formant le micro-miroir est décalé d'une distance d par rapport au cœur de la fibre (en haut) ou si l'axe de la fibre est désaligné de θ par rapport à la normale du miroir plan (en bas).

6. Pour des fibres usinées multimodes (MM), le raisonnement est similaire à celui de la partie précédente : il faut comparer la divergence du mode à l'ouverture angulaire de la fibre. Les fibres MM usinées ont une ouverture numérique de 0,22 et donc une ouverture angulaire de $12,6^\circ$. Cela donne environ 80% de couplage.

Ainsi, l'efficacité de couplage s'écrit [286] :

$$\eta = 4 \left(\left(\frac{w_f}{w_0} + \frac{w_0}{w_f} \right)^2 + \left(\frac{\lambda}{\pi} \frac{L_{\text{air}} + z_f}{w_0 w_f} \right)^2 \right)^{-1} \quad (\text{C.5})$$

Ce couplage est amoindri si le centre de la dépression concave est décalé d'une distance d par rapport au cœur de la fibre ou si l'axe de la fibre est désaligné de θ par rapport à la normale du miroir plan. Dans ce cas, le couplage évolue comme suit [286] :

$$\eta_{d,\theta} = \eta e^{-\left(\left(\frac{d}{d_e} \right)^2 + \left(\frac{\theta}{\theta_e} \right)^2 \right)} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} d_e^2 = \frac{2}{\eta \left(\frac{1}{w_f^2} + \frac{1}{w_0^2} \right)} \\ \theta_e^2 = \frac{2}{\pi^2 \eta \left(\left(\frac{w_f}{\lambda} \right)^2 + \left(\frac{w_0}{\lambda} \right)^2 \right)} \end{cases} \quad (\text{C.6})$$

d_e et θ_e représentent qualitativement la tolérance à un désalignement spatial ou angulaire du mode de la cavité par rapport à celui de la fibre. Figure C.10, le couplage η et les grandeurs caractéristiques d_e et θ_e ont été tracés en fonction de la longueur de cavité L_{air} pour la fibre n°55/84 et, pour comparer, celle de grand rayon de courbure usiné par B. Besga.

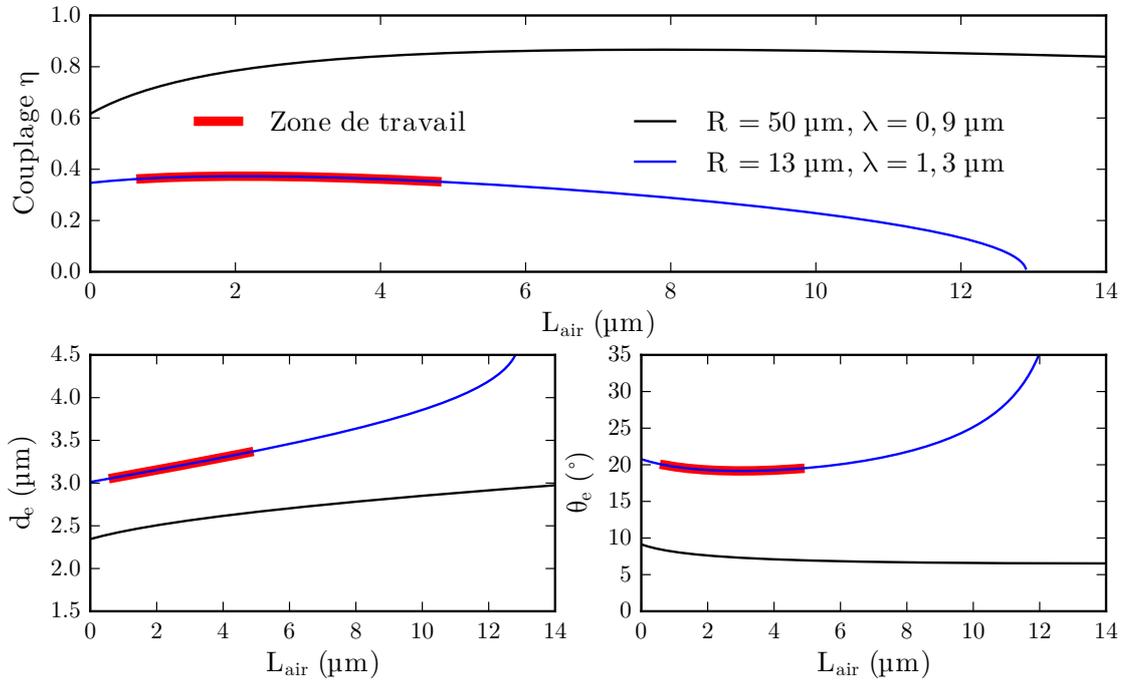


FIGURE C.10 – **En haut** : Couplage η entre le mode de cavité et celui de la fibre à longueur d'onde fixée en fonction de la longueur de cavité L_{air} . **En bas** : Distance d_e et angle θ_e en fonction de L_{air} . Ces grandeurs caractérisent respectivement le centrage de la dépression concave par rapport au cœur de la fibre et l'alignement de la fibre optique par rapport à la normale du miroir plan. La zone de longueurs de cavité exploitées durant les expériences de CQED est représentée en rouge.

Le faible rayon de courbure du micro-miroir n°55/84 engendre un mode de cavité peu large ($w_0 \approx 1,6 \mu\text{m}$ pour le mode 5) qui ne se couple pas parfaitement avec le mode de la fibre ($w_f \approx 4,5 \mu\text{m}$). Toutefois, cela rend le couplage moins sensible au centrage de la dépression concave et à l'alignement de la fibre par rapport à la normale du miroir plan.

Pour la fibre n°55/84, η est supérieur à 35% pour de faibles longueurs de cavité et d_e et θ_e $3 \mu\text{m}$ et 19° dans le pire des cas. La précision latérale du dispositif d'ablation laser est de l'ordre de $1 \mu\text{m}$. Cela concorde avec l'image au microscope de la dépression concave avec injection de lumière blanche dans le mode de la fibre figure 3.33. En outre l'angle θ peut être estimé en utilisant la visualisation de la fibre usinée face à son reflet sur le miroir plan figure C.11. Cette photographie est une projection de l'angle selon un plan donc l'angle θ y est minoré : $2\theta > 5,5^\circ$.

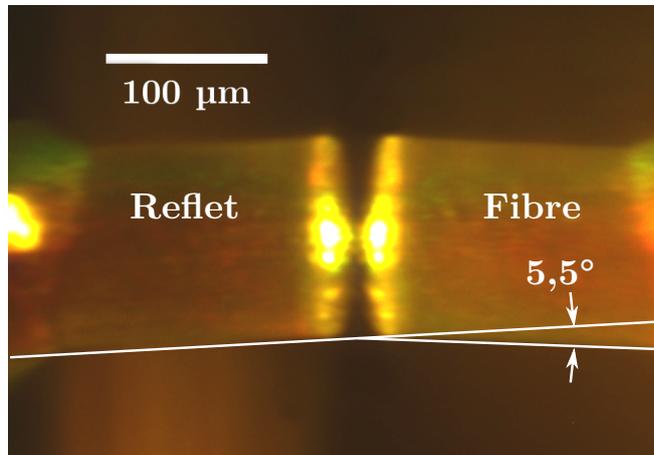


FIGURE C.11 – Image par microscopie optique en réflexion de la fibre usinée n°55/84 face à son reflet sur le miroir plan.

Si $d < 1 \mu\text{m}$, $\exp\left(-\left(d/d_e\right)^2\right) > 0,89$ et si $\theta < 5^\circ$, $\exp\left(-\left(\theta/\theta_e\right)^2\right) > 0,93$. Ainsi, comme η est supérieur à 0,35, pour de faibles longueurs de cavité, $\eta_{d,\theta} > 29\%$.

En sortie de l'enceinte du cryostat, c'est-à-dire après un coupleur de fibres d'une efficacité de 70%, l'intensité collectée atteint environ 20%. Compte tenu de l'asymétrie de la cavité, 10 à 15% de l'intensité totale transmise sont collectés par la fibre en sortie de l'enceinte du cryostat.

APPENDIX D : STABILISATION DE LA MICRO-CAVITÉ

D.1 Stabilisation passive

D.1.1 Filtrage mécanique

Le cryostat à circuit fermé utilisé dans notre dispositif a été modifié afin d'accueillir un isolateur mécanique entre la plateforme supportant la cavité fibrée et le doigt froid. Le but est de filtrer en fréquence l'excitation provenant du doigt froid pour éviter qu'elle ne fasse résonner les nano-positionneurs. L'isolateur mécanique peut être modélisé par l'oscillateur amorti D.1, son équation dynamique est la suivante : $\ddot{z} + \frac{\omega_0}{Q}\dot{z} + \omega_0^2 z = 0$ où ω_0 est la pulsation propre de l'oscillateur et Q son facteur de qualité. L'objectif est donc de maintenir z égal à 0.

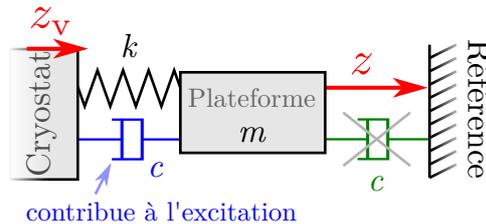


FIGURE D.1 – Schéma de principe d'un oscillateur amorti. m est la masse de la plateforme à amortir, z son écart à la position d'équilibre, $k = m\omega_0^2$ la raideur d'un ressort la liant au cryostat et $c = m\frac{\omega_0}{Q}$ le coefficient d'amortissement visqueux entre la plateforme et le cryostat (en bleu). La plateforme étant refroidie, il n'est pas possible de l'amortir contre une référence fixe (en vert) sans faire de pont thermique.

Si le cryostat est soumis à des vibrations z_v , la force de rappel et les frottements visqueux sur le mobile deviennent respectivement $-k(z - z_v)$ et $-c(\dot{z} - \dot{z}_v)$ [287]. En passant dans l'espace de Fourier, vient l'équation : $(i\omega\frac{\omega_0}{Q} + \omega_0^2 - \omega^2)z = (\omega_0^2 + i\omega\frac{\omega_0}{Q})z_v$.

Elle permet de définir la fonction de transfert mécanique $H \equiv \frac{z}{z_v} = \frac{1 + i\frac{1}{Q}\frac{\omega}{\omega_0}}{1 - \frac{\omega^2}{\omega_0^2} + i\frac{1}{Q}\frac{\omega}{\omega_0}}$,

c'est un filtre passe-bas comportant une résonance à ω_0 si $Q > \frac{1}{2}$. Pour découpler la plateforme du support, il faut faire tendre ω_0 vers 0. Ce cas ne pouvant pas être atteint en pratique, la pulsation ω_0 doit être choisie la plus basse possible. Comme représenté figure D.2, il s'agit de trouver un compromis entre faire tendre la fréquence de coupure vers 0 et empêcher l'apparition d'une forte résonance des vibrations (courbes bleues). Ce problème ne se présenterait pas s'il était possible de mettre en place un amortissement entre la plateforme et une référence fixe (courbes vertes).

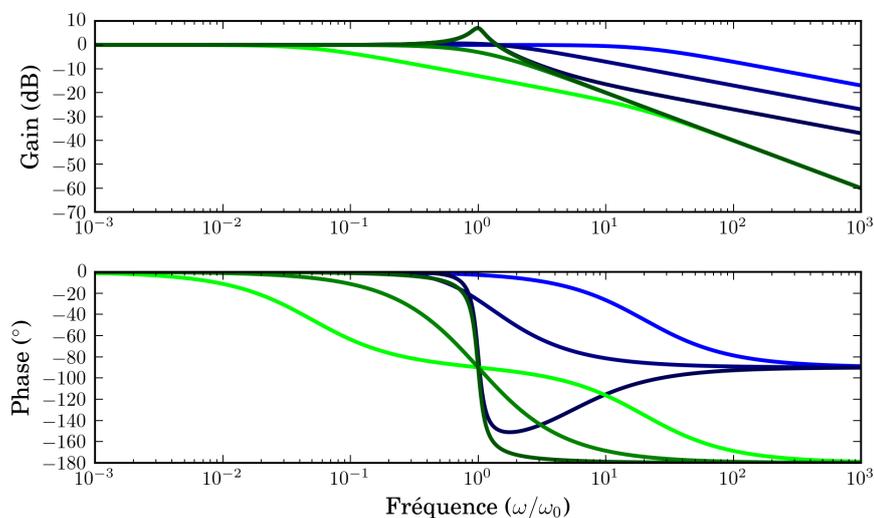


FIGURE D.2 – Diagramme de Bode en amplitude d’un oscillateur amorti dans le cas d’une excitation par la position seule (courbes vertes) et d’une excitation par la position et la vitesse (courbes bleues) pour trois valeurs du facteur de qualité $Q = 0,05, 0,5$ et 5 (plus Q est élevé, plus la courbe est sombre).

Calcul de la résonance du filtre

Pour réaliser ce filtre, une niche a été ménagée dans le cryostat pour accueillir deux poutres souples schématisées D.3. Elles sont placées orthogonalement à la direction à stabiliser et sont encastrées dans la plateforme. Le système de fixation visible figure D.4 est conçu pour convenir à des poutres de n’importe quel matériau et d’une épaisseur de 0 à 3 mm. Le dispositif étant sous vide et à basse température, l’amortissement mentionné précédemment provient principalement de la flexion inélastique des poutres. Le choix du matériau et l’épaisseur des poutres conditionnent à la fois la pulsation propre du filtre et son facteur de qualité.

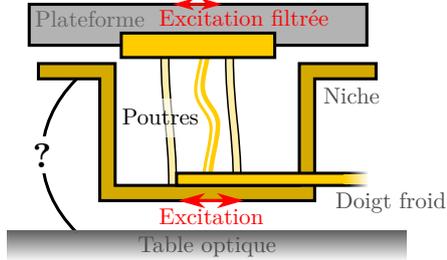


FIGURE D.3 – Schéma des poutres isolant la plateforme du reste du cryostat. La raideur de la tresse thermique est supposée négligeable.

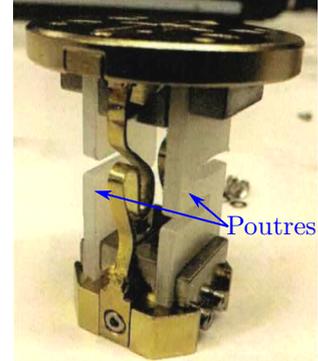


FIGURE D.4 – Isolateur mécanique sur mesure proposé par Montana Instruments. Le doigt froid du cryostat est en contact avec le socle et un pont thermique relie la plateforme à ce dernier. Les poutres blanches en « S » sont en PTFE et mesurent 2,4 mm d'épaisseur.

Pour calculer les résonances du filtre, considérons une portion infinitésimale de poutre de longueur dy , de masse $\rho S dy$ et subissant une force tangentielle \mathbf{T} comme définie figure D.5. Un bilan des moments sur l'axe x donne la relation :

$$-M(y + dy) + M(y) - T(y) \frac{dy}{2} - T(y + dy) \frac{dy}{2} = 0 \Rightarrow \frac{dM}{dy} = -T \quad (\text{D.1})$$

De plus, en notant Y le module de Young du matériau constituant la poutre, I son moment quadratique selon la direction z ($I = \frac{le^3}{12}$ avec les notation de D.5) et γ sa courbure, la relation de Euler–Bernoulli [287] s'écrit :

$$M = -YI\gamma \quad (\text{D.2})$$

Pour de petits déplacements, la courbure γ s'identifie à $\frac{d^2z}{dy^2}$. Dans le schéma D.5 $\gamma > 0$ et le moment M tend à faire tourner la partie droite dans le sens horaire donc $M < 0$, le signe $-$ dans la relation D.2 est bien vérifié. En combinant D.1 et D.2, il vient :

$$T = YI \frac{d^3z}{dy^3} \quad (\text{D.3})$$

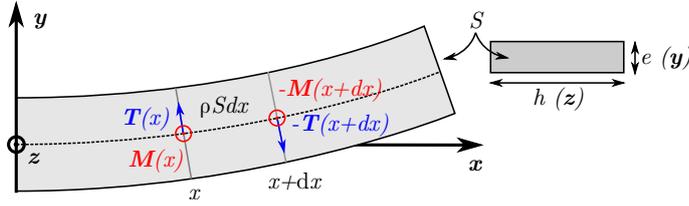


FIGURE D.5 – Schéma d'une poutre vibrante de section S , d'épaisseur e selon la direction z et de largeur h selon la direction x et de masse volumique ρ . La force tangentielle $T(y)$ et le moment $M(y)$ sont exercés par la partie gauche de la poutre ($< y$) sur la partie droite ($> y$).

Enfin, l'équation de propagation des vibrations dans la poutre est obtenue en appliquant le principe fondamental de la dynamique sur l'axe z sur la portion de poutre dy :

$$\rho S dy \ddot{z} = -T(y + dy) + T(y) \Rightarrow \frac{\partial^2 z}{\partial t^2} + \frac{YI}{\rho S} \frac{\partial^4 z}{\partial y^4} = 0 \quad (\text{D.4})$$

Il est possible de résoudre l'équation D.4 par séparation des variables en cherchant des solutions sous la forme $z(x, t) = \chi(t)\phi(y)$. Ainsi pour une solution non nulle et qui ne diverge pas pour $t \rightarrow 0$,

$$\begin{cases} \frac{d^2 \chi}{dt^2} + \omega^2 \chi = 0 \\ \frac{d^4 \phi}{dy^4} - k^4 \phi = 0 \end{cases} \text{ où } \omega^2 = \frac{YI}{\rho S} k^4. \quad (\text{D.5})$$

La constante k est définie par les conditions de bord appliquées sur la poutre, exprimons-les. Soient les constantes A , B , C et D telles que $\phi = A \cos(ky) + B \sin(ky) + C \cosh(ky) + D \sinh(ky)$ est une solution de la partie spatiale de l'équation D.5.

- Pour $y = 0$, la poutre est fixe : $\phi(0) = 0 \Rightarrow A + C = 0$
- Pour $y = 0$, la tangente à la poutre est nulle : $\frac{d\phi}{dy}(0) = 0 \Rightarrow B + D = 0$
- À l'extrémité de la poutre $y = l$, la tangente est également nulle : $\frac{d\phi}{dy}(l) = 0 \Rightarrow -A \sin(kl) + B \cos(kl) + C \sinh(kl) + D \cosh(kl) = 0$
- Le principe fondamental de la dynamique appliqué à la plateforme de masse m donne, $m \ddot{z}(y = l, t) = 2T(y = l, t) = 2YI \frac{d^3 z}{dy^3}(y = l, t)$. $\ddot{z}(y = l, t) = -\frac{EI}{\rho S} k^4 z(y = l, t)$ d'après D.5. Il vient $\lambda k^4 \phi(l) + \frac{d^3 \phi}{dy^3}(l) = 0$ où $\lambda \equiv \frac{m}{2\rho S l}$. Cela donne

$$\begin{aligned} & A [\lambda k \cos(kl) + \sin(kl)] + B [\lambda k \sin(kl) - \cos(kl)] \\ & + C [\lambda k \cosh(kl) + \sinh(kl)] + D [\lambda k \sinh(kl) + \cosh(kl)] = 0 \end{aligned} \quad (\text{D.6})$$

Le quadruplet (A, B, C, D) est non nul si :

$$\begin{vmatrix} 1 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 1 \\ -\sin(kl) & \cos(kl) & \sinh(kl) & \cosh(kl) \\ \lambda k \cos(kl) + \sin(kl) & \lambda k \sin(kl) - \cos(kl) & \lambda k \cosh(kl) + \sinh(kl) & \lambda k \sinh(kl) + \cosh(kl) \end{vmatrix} = 0 \quad (\text{D.7})$$

Cette équation se reformule ainsi :

$$\lambda \underbrace{[\cosh(kl) \cos(kl) - 1]}_{\text{encastrée/encastrée}} + \frac{\cosh(kl) \cos(kl)}{kl} \underbrace{[\tanh(kl) + \tan(kl)]}_{\text{encastrée/glissante}} = 0 \quad (\text{D.8})$$

La condition sur k obtenue est un mélange entre deux conditions de bord tabulées : « encastrée/encastrée » et « encastrée/glissante » [287]. λ est défini comme le rapport de masse de la plateforme sur celle des deux poutres. Si λ tend vers 0 aucune force ne s'applique sur les extrémités des poutres, elles peuvent *glisser* sans contrainte dans la direction \mathbf{y} . À l'inverse, si λ est suffisamment grand, l'inertie de la plateforme est telle qu'elle ne bouge pas sous l'action des poutres. En pratique $2\rho Sl \approx 1,5 \text{ g}$ et $m \approx 160 \text{ g}$ donc $\lambda \approx 1\%$. Les poutres peuvent être considérées comme « encastrée/encastrée ».

Par résolution numérique, les valeurs de kl possibles sont :

$$k_1 l \approx 4,7 \quad k_2 l \approx 7,9 \quad k_n l \approx (2n + 1) \frac{\pi}{2} \quad \text{avec } n \text{ un entier supérieur à } 2$$

Dans le cas d'une poutre « encastrée/libre », les conditions de bord imposent $\cosh(kl) \cos(kl) + 1 = 0$. Cela donne une première résonance où $k_{\text{lib}} l \approx 1,9$.

Mesure des résonances et effet de raideur négative

Des tests préliminaires sont réalisés sur les poutres avant de les installer dans l'enceinte du cryostat. Dans ce cadre, leur résonance est mesurée en condition « encastrée/libre ». Les formules régissant ces résonances sont les suivantes :

$$\begin{cases} f_{\text{lib}} \approx \frac{3,5}{4\pi} \frac{e}{l^2} \sqrt{\frac{Y}{3\rho}} & \text{« encastrée/libre », tests préliminaires} \\ f_{\text{enc}} \approx 6,4 f_{\text{lib}} & \text{« encastrée/encastrée », conditions réelles} \end{cases} \quad (\text{D.9})$$

où e est l'épaisseur des poutres, l leur longueur, Y leur module d'Young et ρ leur masse volumique.

En pratique, les poutres qui ont donné les meilleurs résultats sont en aluminium $Y = 69 \text{ GPa}$, $\rho = 2,7 \text{ g cm}^{-3}$ et leurs paramètres géométriques sont $l = 37,5 \text{ mm}$ et $e = 0,20 \text{ mm}$. Cela donne $f_{\text{lib}} \approx 120 \text{ Hz}$ et $f_{\text{enc}} \approx 740 \text{ Hz}$.

Pour mesurer les résonances, un système aimant/bobine décrit à la figure D.6 a été utilisé pour réaliser un capteur de vitesse [288]. La force électromotrice V mesurée sur la bobine est $-\frac{d\Phi}{dt}$ où Φ est le flux magnétique. Or, le champ magnétique

évolue en $\frac{1}{z^2}$ où z est la distance entre la bobine et l'aimant tant que z est grand devant l'épaisseur de ce dernier. Pour une excitation indicielle de faible amplitude, la mesure de $V \propto \frac{1}{z^3} \dot{z}$ permet de remonter aux résonances du système. Cette technique de mesure est très pratique mais, du fait de son encombrement, elle ne peut être utilisée sur la plateforme que lorsque l'enceinte du cryostat est ouverte.

La fréquence f_{lib} , mesurée à 110 Hz sur le signal bleu représenté sur la figure D.7, est très proche de la valeur calculée de 120 Hz compte-tenu des incertitudes sur la pureté du matériau, l'épaisseur des poutres et la qualité des fixations. Par contre, il y a un facteur 24 entre la mesure de f_{enc} sur la courbe rouge et la valeur calculée. Ce n'est pas surprenant étant donné que le modèle développé ci-dessus ne prend pas en compte le poids exercé par la plateforme sur les poutres.

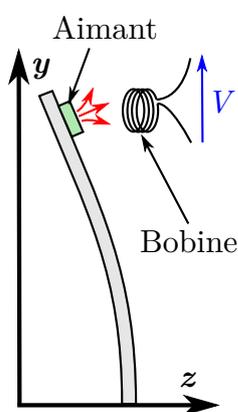


FIGURE D.6 – Un aimant est fixé à l'extrémité de l'objet vibrant et une tension V est mesurée aux bornes d'une bobine placée à proximité. Le signal obtenu est proportionnel à la vitesse de l'aimant.

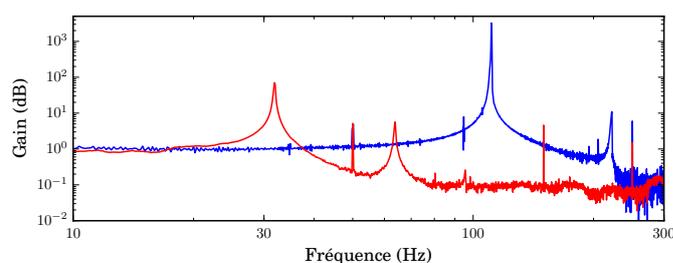


FIGURE D.7 – Amplitude du signal défini figure D.6 après une excitation indicielle en fonction de la fréquence. La courbe bleue provient du système test poutre encastree/libre (résonance à 110 Hz) et celle en rouge de la plateforme soutenue par deux poutres (résonance à 32 Hz).

Le poids de la plateforme tend à augmenter la déflexion de la poutre et donc à en diminuer la raideur (voir figure D.8). Cet effet dit de *raideur négative* [289] est bénéfique car il déplace la résonance du filtre vers les basses fréquences. Il est d'ailleurs couramment utilisé dans la stabilisation passive d'instrument de précision [290]. Bien qu'il soit difficile de le quantifier précisément, il est possible d'évaluer la masse critique pour laquelle la raideur effective du système tend vers 0 [291]. Un bilan des moments en O sur la poutre figure D.9 soumise à un poids P_g donne $-M + P_g y = 0$ (le moment s'exerce de la gauche sur la droite). Ainsi, en notant I le moment d'inertie de la poutre selon x et d'après la relation d'Euler-Bernoulli D.2,

$$\frac{d^2 z}{dy^2} + \kappa^2 z = 0 \text{ avec } \kappa = \frac{P_g}{YI}. \quad (\text{D.10})$$

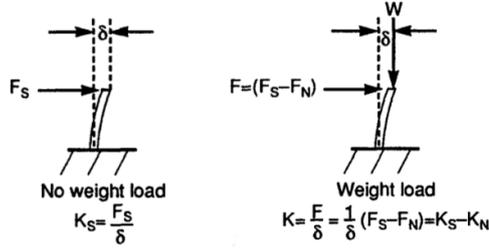


FIGURE D.8 – À gauche : la raideur effective K_S vaut la force de rappel F_S divisée par le déplacement dû aux vibrations δ pour une poutre supportant une masse nulle. À droite : la masse de la plateforme est prise en compte et contribue à la flexion de la poutre. Ainsi la force nécessaire pour déplacer l’extrémité de δ est réduite ce qui donne une raideur effective $K < K_S$. La figure est tirée de [289].

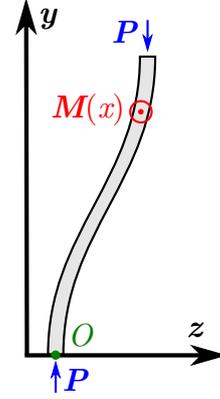


FIGURE D.9 – Schéma d’une poutre comprimée par un poids P .

Les solutions de l’équation D.9 se mettent sous la forme $z = a \sin(\kappa y) + b \cos(\kappa y)$. La poutre est encastrée aux deux extrémités donc $\frac{dz}{dy}(L) = \frac{dz}{dy}(0) = 0$ ce qui impose que κ doit être égal à un multiple de $\frac{\pi}{l}$. Ainsi, la poutre se plie comme sur la figure D.9 si :

$$P_g > P_c \equiv YI \left(\frac{\pi}{l} \right)^2 \quad (\text{D.11})$$

Ce poids critique P_c est appelé poids d’Euler [291], la masse critique m_c est définie égale à $\frac{P_c}{g}$. Pour faire tendre la résonance du filtre vers 0, il faut que la masse de la plateforme s’approche autant que possible de la masse critique. Néanmoins, pour éviter que les poutres ne cassent pendant l’alignement ou lors du passage à froid, la masse de la plateforme n’atteint que 10% de la masse critique.

Pour les poutres en aluminium décrites précédemment, $m_c \approx 0,61$ kg. La masse de la plateforme est limitée à 1,2 kg puisqu’elle est répartie sur deux poutres. En pratique sa masse est d’environ 160 g.

Les poutres ont été choisies afin de minimiser leur résonance et le poids d’Euler tout en préservant la robustesse du dispositif (à températures ambiante et cryogénique).

Comportement à basse température

Le comportement d’un système mécanique à température cryogénique étant difficilement prévisible, différents matériaux ont été comparés pour les poutres. Voici un tableau récapitulatif des fréquences théoriques f_{enc} atteintes à température ambiante et à température cryogénique pour un poids d’Euler fixé à 1,2 kg à chaud. La

contraction thermique lors du passage à froid, notée $\chi_{\text{amb} \rightarrow 20\text{K}}$, a été prise en compte dans les calculs.

	PTFE	PC	Al	Chrysocale	Cu
Y_{amb} (GPa)	0,4-0,6	2,0-2,4	69	110-125	110-128
$Y_{20\text{K}}$ (GPa) [292, 244]	6-10	6-10	~ 80	-	~ 140
ρ_{amb} (g cm ⁻³)	2,2	1,2	2,7	8,8	9,0
$\chi_{\text{amb} \rightarrow 20\text{K}}$ (%) [292, 244]	2	1	0,3	0,4	0,4
e (mm)	0,97-1,1	0,61-0,65	0,20	0,16-0,17	0,16-0,17
$f_{1, \text{amb}}$ (kHz)	0,35-0,37	0,61-0,63	0,74	0,44-0,45	0,44-0,45
$P_{c, 20\text{K}}$ (kg)	12-29	2,9-5,9	1,4	-	1,3-1,5
$f_{1, 20\text{K}}$ (kHz)	1,2-1,7	0,99-1,4	0,79	-	0,47-0,49

- Le **PTFE**, polymère facilement usinable et très souple à température ambiante, était le candidat retenu par Montana Instruments. Il permet d'atteindre facilement des fréquences de résonance relativement basses. Cependant, la nécessité de contraindre l'épaisseur des poutres pour que la plateforme reste suffisamment soutenue à chaud implique un poids d'Euler très élevé à froid. L'effet de raideur négative, déterminant dans l'isolation des vibrations, devient donc négligeable à froid.
- Plus rigide que le PTFE à température ambiante, le **polycarbonate** (PC) permet d'atteindre des épaisseurs plus faibles. De plus, les pertes inélastiques (modélisées par un module élastique imaginaire pur) sont comparables à celles présentes dans un métal : $Y_{\text{pertes}} \sim 0,1$ GPa [244]. Pour de faibles amortissement $Q \sim \frac{Y}{Y_{\text{pertes}}}$, il est possible d'espérer $Q_{\text{PC}} \sim \frac{Y_{\text{PC}}}{Y_{\text{métal}}} Q_{\text{métal}}$ c'est-à-dire $Q_{\text{PC}} \sim Q_{\text{métal}}/10$ à basse température. Cependant, du fait de la forte variation de son module de Young lors du passage à froid et de sa faible densité, les fréquences de résonance atteintes à basse température restent élevées.
- Les **métaux** présentent l'intérêt de ne pas changer drastiquement de propriétés mécaniques en fonction de la température. L'aluminium et le cuivre ont été retenus car, parmi les métaux courants, ils possèdent un module de Young deux fois plus faible que celui de l'acier ($Y_{\text{acier}} \sim 210$ GPa). L'aluminium est plus léger mais amorti mieux les vibrations du fait de sa plus grande compressibilité [293]. Le Chrysocale (Cu, Sn 3%, Zn 9%) a aussi été testé car il peut être laminé sur de très faibles épaisseurs bien qu'il induise un faible amortissement.

En pratique, les poutres en polycarbonate les plus fines testées ($e = 0,75$ mm) ont mené à une résonance de 270 Hz à basse température. Cela ne suffit pas pour filtrer les fréquences typiques d'excitation décrites partie 4.1.1.1. La plus basse fréquence de résonance a été atteinte avec les poutres en aluminium présentées partie D.1.1. Elle est estimée à 35 Hz à partir de la mesure figure D.10 (courbe bleue) ce qui reste élevé comparativement à la fréquence des cycles du cryostat ($f_{\text{cryostat}} = 0,8$ Hz). En outre,

ANNEXE D. STABILISATION DE LA MICRO-CAVITÉ

l'amortissement du filtre mécanique est suffisamment faible à froid ($Q \sim 570$ i.e. $Y_{\text{pertes}} \sim 0,14$ GPa) pour que l'amplification des vibrations à résonance pose problème.

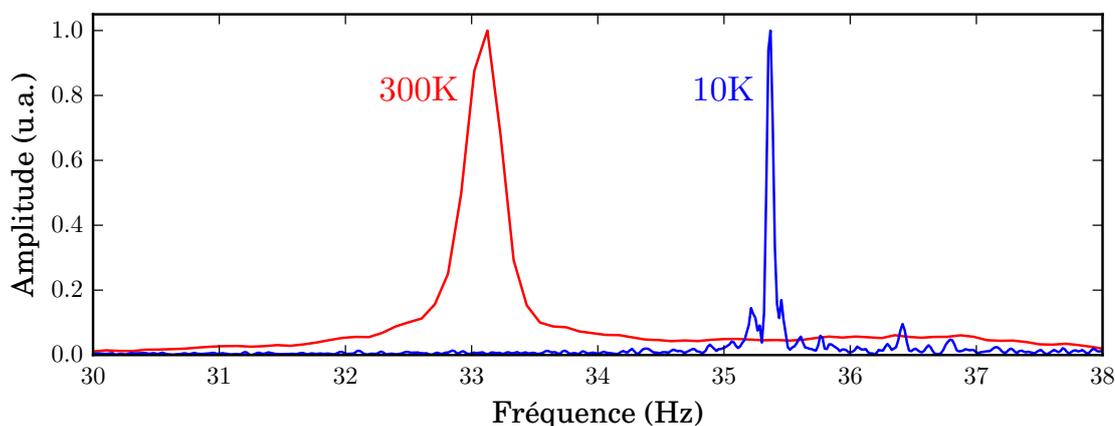


FIGURE D.10 – Amplitude des vibrations de la micro-cavité en fonction de la fréquence autour de la résonance de la plateforme à T_{amb} (en rouge) et à 20 K (en bleu). La fréquence de résonance à T_{amb} correspond bien à celle mesurée D.7. Une rigidification du système et une diminution de l'amortissement est observée à froid : la fréquence de résonance passe de 32 Hz pour $Q \sim 80$ à 35 Hz pour $Q \sim 570$. L'excitation mécanique étant plus faible à chaud, la résonance a été excitée par un choc sur la table optique.

Pour éviter d'obtenir des résonances trop marquées, les poutres rectangulaires ont finalement été remplacées par de la paille de cuivre figure D.11 et D.12 sur les conseils de Jean Etesse du *Quantum Memory Group* de l'université de Genève.

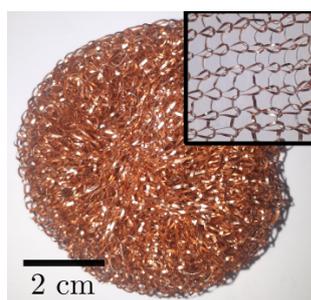


FIGURE D.11 – La « paille » de cuivre utilisée est constituée d'un fil de cuivre (encart) enroulé sur lui-même. Le ruban formant le fil est large de 0,7 mm, épais de 30 μm et sa longueur libre moyenne est d'environ 7 mm.

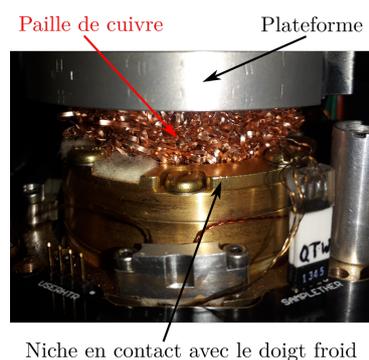


FIGURE D.12 – La paille de cuivre est insérée dans la niche refroidie censée accueillir le filtre mécanique. Le pont thermique Montana Instruments reliant la plateforme au doigt froid passe au centre de la paille de cuivre.

Il est difficile d'estimer précisément le comportement de la paille de cuivre mais le filtrage mécanique peut être décrit qualitativement. Dans le cas d'un réseau aléatoire bidimensionnel de ressorts, la vitesse de propagation s'écrit $v = \alpha \omega_f \sqrt{l_f^2/q_S}$ où α est une constante proche de l'unité, ω_f et l_f sont respectivement la pulsation propre et la longueur à vide d'un ressort et q_S le nombre moyen de ressort sur une surface l_f^2 [294]. En généralisant cette formule à notre cas tridimensionnel, la fréquence de résonance du système serait de l'ordre de $\frac{1}{2\pi} \omega_f q_V^{-1/2} \sim \frac{e_f}{l_f^2} \sqrt{\frac{Y}{3\rho q_V}}$ où q_V est le nombre moyen de ressorts dans un volume l_f^3 .

Le cuivre a un module de Young $Y \sim 140$ GPa à basse température et une masse volumique $\rho = 9,0$ g cm⁻³, la paille de cuivre a une densité de 2,5% et le ruban qui la compose a une largeur de 0,7 mm, une épaisseur de 30 μm et sa longueur libre moyenne vaut $l_f = 7$ mm. Cela donne $q_V = 56$ et $f = \frac{e_f}{l_f^2} \sqrt{\frac{Y}{3\rho q_V}} \sim 0,2$ kHz.

L'ordre de grandeur de fréquence correspond à celui du système avec poutres mais la répartition aléatoire d'angles et de longueurs devrait limiter l'apparition de résonances dans la fonction de transfert du filtre. Ce dernier ne devrait pas perdre en amortissement puisque le facteur de qualité évolue proportionnellement à l'inverse de la masse de matériau en jeu par analogie avec les mousses métalliques [295]. Les 6 g de paille de cuivre insérés dans le cryostat équivalent à la masse de deux poutres de 0,5 mm d'épaisseur. En outre, les rubans de cuivre étant très fins, des déformations plastiques devraient contribuer à la dissipation.

Toutefois, même si la résonance parasite due aux poutres en aluminium disparaît avec la mise en place de la paille de cuivre, aucune amélioration n'a été constatée sur l'amplitude des vibrations au niveau de la cavité. C'est pourquoi d'autres méthodes ont été implémentées pour les atténuer plus localement.

D.1.2 Amortissement par courant de Foucault

L'induction s'oppose par ses conséquences aux causes qui lui ont donné naissance. Elle peut être utilisée pour isoler mécaniquement des dispositifs destinés aux températures cryogéniques. Un exemple est présenté figure D.13, il s'agit d'une plateforme stabilisée pour la microscopie à force atomique ou à effet tunnel descendant jusqu'à 25 K. Elle a inspiré les éléments figure D.14 permettant un amortissement par courant de Foucault entre les sommets des deux piles supportant respectivement l'échantillon et la fibre usinée (voir figure 4.4). Ces éléments sont visibles en conditions réelles dans l'enceinte à vide cryostat figure 4.7.

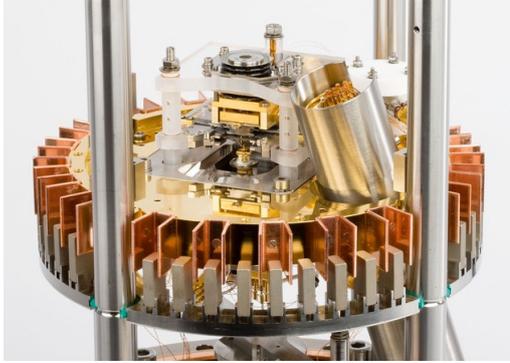


FIGURE D.13 – Plateforme de microscopie à sonde locale Omicron autorisant une large gamme de température (de 25 K à 1500 K). La plateforme à stabiliser est entourée d'ailettes de cuivre s'intercalant entre deux aimants permanents aux terres rares. Le cercle supportant les aimants est lui-même isolé du cadre par des élastomères pour éviter une excitation par la vitesse de la plateforme (voir partie D.1.1).

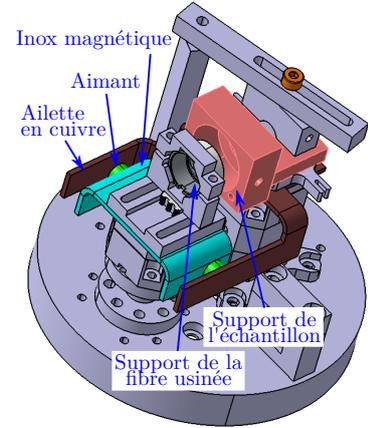


FIGURE D.14 – Design de l'amortissement par courant de Foucault entre les sommets de la pile soutenant l'échantillon et de celle soutenant la lentille percée contenant la fibre usinée. Un mouvement relatif d'une pile par rapport à l'autre revient au déplacement des ailettes de cuivre par rapport aux aimants permanents et provoque un amortissement.

L'aimant permanent génère un champ magnétique \mathbf{B} qui induit une densité de courant $\mathbf{j} = \sigma \mathbf{v} \wedge \mathbf{B}$ dans l'ailette de cuivre avec σ la conductivité du cuivre et \mathbf{v} la vitesse relative de l'ailette par rapport à l'aimant. Ainsi, si \mathbf{v} est orthogonale à \mathbf{B} , la force de Lorentz exercée par l'aimant sur l'ailette est $\mathbf{F} = -\sigma V_{\text{eff}} B^2 \mathbf{v}$ où V_{eff} est le volume de l'ailette dans lequel sont induits les courants \mathbf{j} . Le temps caractéristique d'amortissement τ est défini comme le rapport de l'énergie cinétique \mathcal{E}_c du mouvement relatif des piles sur la puissance dissipée \mathcal{P} :

$$\tau \equiv \frac{\mathcal{E}_c}{\mathcal{P}} = \frac{\frac{1}{2} m v^2}{\sigma_e V_{\text{eff}} B^2 v^2} = \frac{m}{2 \sigma_e V_{\text{eff}} B^2} \text{ où } m \text{ est la masse réduite caractéristique des piles.}$$

La masse réduite m des parties mobiles des deux piles de nano-positionneurs est estimée à 10 g, le cuivre utilisé a une conductivité $\sigma_e = 5,9 \times 10^7$ S/m, l'ailette mesure 1 mm d'épaisseur et l'aimant est long de 10 mm et large de 5 mm. Le champ rémanent de l'aimant vaut 1,42 T selon ses spécifications et, en prenant en compte la distance d'environ 1 mm à l'ailette (voir figure 4.7), l'amplitude du champ B vaut 0,3 T [296]. En prenant en compte les deux aimants, $\tau = 9,4$ ms pour $B = 0,3$ T (et $\tau = 0,4$ ms pour $B = 1,42$ T). Pour une fréquence de vibrations $f_v = 165$ Hz et en ne considérant que les frottements par courant de Foucault, cela donne un facteur de

qualité $Q = 4\pi f_v \tau \approx 20$ pour $B = 0,3$ T (et $Q \approx 0.9$ pour $B = 1,42$ T).

Les données destinées à estimer la finesse des micro-cavités fibrées avec la méthode définie partie C.2.1 ont été utilisées afin d'évaluer τ . La micro-cavité est excitée par un laser de longueur d'onde λ pendant qu'une rampe de tension est imposée au nano-positionneur inertiel supportant le miroir fibré. La transmission de la cavité, enregistrée via une photodiode, présente des pics d'intensité à chaque fois que la cavité passe par une longueur multiple de $\lambda/2$. En présence d'amortissement la vitesse n'est pas constante donc la durée séparant deux pics ne l'est pas non plus. D'après le constructeur, le nano-positionneur a une vitesse proportionnelle à la rampe de tension imposée \dot{u}_{att} en régime stationnaire. En notant z la position du micro-miroir et α un coefficient de conversion en nm/V, tout se passe comme si :

$$\ddot{z} + \frac{1}{\tau_0} \dot{z} = \frac{\alpha}{\tau_0} \dot{u}_{\text{att}} \text{ où } \tau_0 \text{ est le temps de réponse du nano-positionneur.} \quad (\text{D.12})$$

En prenant en compte les frottements par courant de Foucault, l'équation devient :

$$\ddot{z} + \frac{1}{\tau'} \dot{z} = \frac{\alpha}{\tau_0} \dot{u}_{\text{att}} \text{ où } \tau' = \left(\frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{2\tau} \right)^{-1} \quad (\text{D.13})$$

Sachant que $\dot{z}(0) = 0$ et $z(0) = 0$, les solutions en vitesse et position sont :

$$\begin{cases} \dot{z} = \alpha \frac{\tau'}{\tau_0} \dot{u}_{\text{att}} \left(1 - e^{-t/\tau'} \right) \\ z = \alpha \frac{\tau'}{\tau_0} \dot{u}_{\text{att}} \left[t - \tau' \left(1 - e^{-t/\tau'} \right) \right] \end{cases} \quad (\text{D.14})$$

L'évolution de la position en fonction du temps et l'apparition des pics de cavités sont représentés figure D.15. Puisque le coefficient α dépend de la charge sur le nano-positionneur, τ doit être déterminé indépendamment de α . Considérons le passage de trois pics de cavité aux temps t_0 , t_1 et t_2 , $z(t_1) - z(t_0) = z(t_2) - z(t_1) = \lambda/2$. Cela donne d'après D.14 :

$$-\frac{t_2 - 2t_1 + t_0}{\tau'} = e^{-t_2/\tau'} - 2e^{-t_1/\tau'} + e^{-t_0/\tau'} \text{ si } z(t_2) - 2z(t_1) + z(t_0) = 0 \quad (\text{D.15})$$

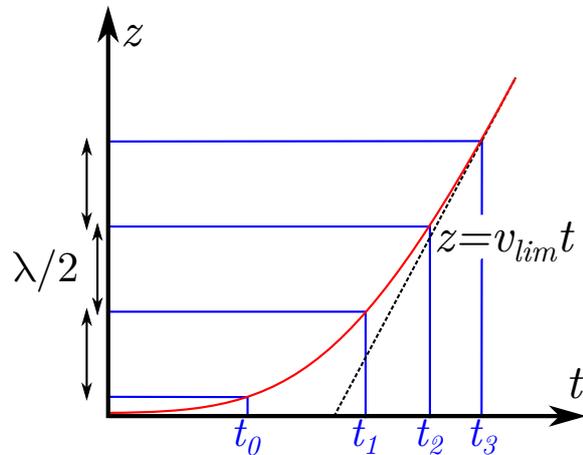


FIGURE D.15 – Évolution qualitative de la position du micro-miroir en fonction du temps dans le cas d'un amortissement visqueux. Les lignes bleues correspondent au passage à résonance de la cavité pour une longueur d'onde λ . En mesurant la transmission de la cavité, des pics d'intensité sont observés aux temps t_0 , t_1 , t_2 et t_3 .

L'équation D.15 sur τ' peut être résolue numériquement. Deux signaux présentant trois pics de transmission sont tracés figure D.16. Le signal bleu fait office de référence tandis que le rouge a été obtenu avec le système d'amortissement par courant de Foucault. Pour faire défiler trois pics de transmission dans le cas amorti, il a fallu imposer une rampe de tension 20 fois supérieure au cas de référence. De plus, la micro-cavité est différente pour les deux jeux de données ce qui complique la lecture des résultats puisque λ change. Pour ces deux raisons, l'axe temporel a été exprimé en unités de λ/v_{att} . Un traitement statistique donne $\tau_0 = 20 \pm 1$ ms en référence et $\tau' = 2.3 \pm 0.3$ ms dans le cas amorti, donc $\tau = 1.3 \pm 0.2$ ms soit $Q \approx 2,7$ pour $f_v = 165$ Hz.

Bien que l'amortissement du nano-positionneur soit net, aucune diminution de l'amplitude des vibrations n'est observée au niveau de la cavité optique. Deux interprétations sont proposées : ou bien le dispositif d'amortissement est trop éloigné de la cavité (>1 cm) pour avoir un effet significatif, ou bien l'amortissement ne provient pas des courants de Foucault. En effet, il pourrait aussi provenir de frottements internes au nano-positionneur dus au poids supplémentaire des pièces présentées figure D.14. Dans ce cas, le nano-positionneur est ralenti sans que les vibrations soient forcément impactées.

D.1.3 Pistes d'amélioration

Du fait de la grande course de déplacement des nano-positionneur, notre système est beaucoup plus sensible aux vibrations qu'un dispositif de micro-cavité plus conventionnel. Par exemple, le dispositif de micro-cavité fibré visible figure D.17 utilisé dans le groupe de Lilian Childress est beaucoup plus rigide [297].

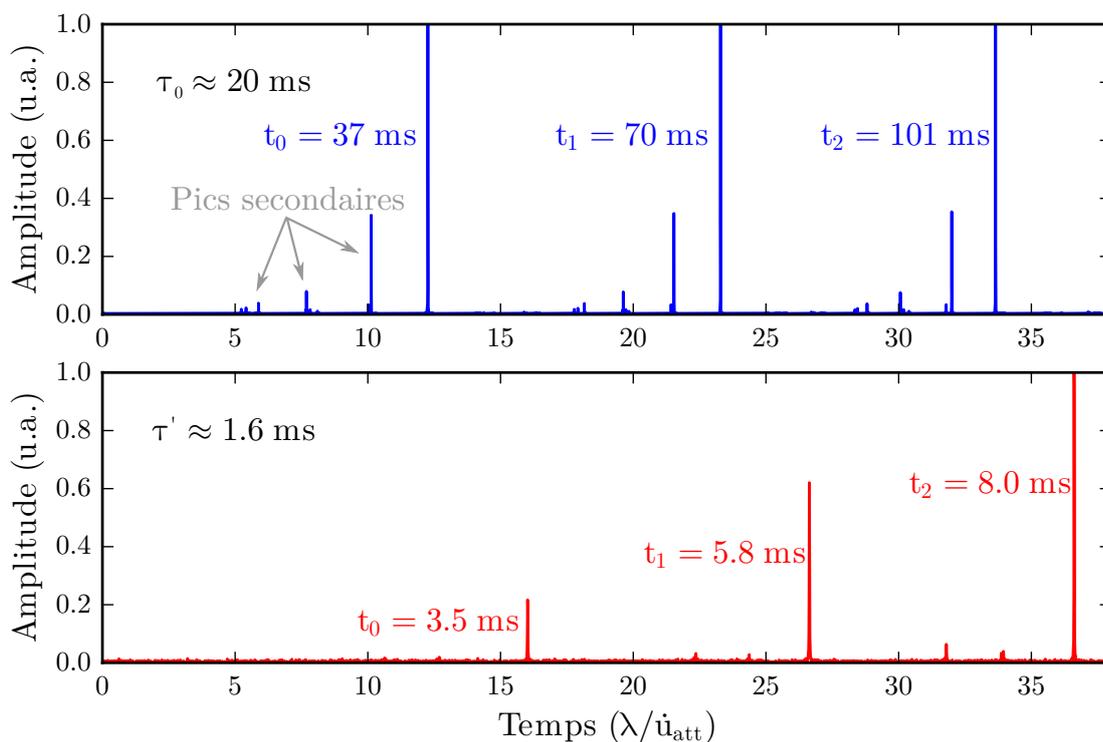


FIGURE D.16 – Transmission de micro-cavités fibrées sous une excitation laser de longueur d’onde λ . Le signal est enregistré par une photodiode pendant que le nano-positionneur inertiel supportant la lentille percée est soumis à une rampe de tension $U = \dot{u}_{\text{att}}t$. La courbe bleue a été réalisée avec une micro-cavité 840-980 nm pour $\lambda = 900$ nm en imposant une tension de $\dot{u}_{\text{att}} = 0,3$ kV/s et la courbe rouge avec une micro-cavité 1360-1540 nm amortie par courant de Foucault pour $\lambda = 1310$ nm avec une tension de $\dot{u}_{\text{att}} = 6$ kV/s. Pour comparer les deux jeux de données, le temps a été représenté en unité de $\lambda/\dot{u}_{\text{att}}$ (s nm/V).

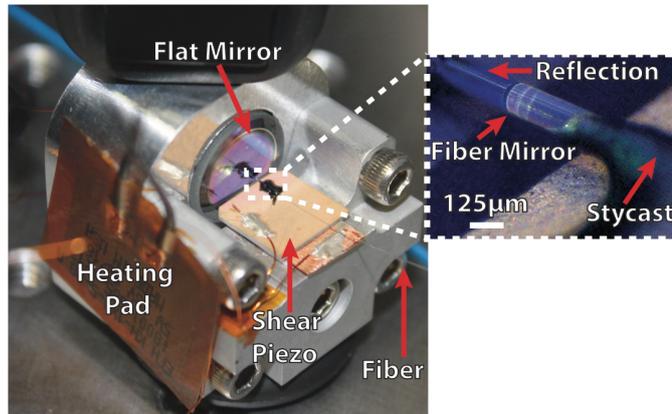


FIGURE D.17 – Micro-cavité fibrée utilisée dans l'équipe *Quantum Optics and Spin Physics* de Lilian Childress [297]. Dans l'encart, la fibre usinée, collée à l'actionneur piézoélectrique, fait face à son reflet.

En satisfaisant les contraintes propres à notre expérience, il paraît difficile d'atteindre un tel degré de stabilité passivement. Néanmoins, après discussion avec Dimitri Roditchev du groupe *QuantumSpecs* (ESPCI), plusieurs pistes (schématisées figure D.18) pourraient contribuer à réduire encore l'amplitude des vibrations dans le système :

1. Une faiblesse du système provient des vibrations des piles de nano-positionneurs. Dans une version améliorée du dispositif, le support de la fibre usinée arriverait en butée contre celui de l'échantillon lors de la mise en cavité. Un nano-positionneur inertiel personnalisé prendrait ensuite le relais pour contrôler la longueur de cavité. Dans ce cas le dispositif serait plus rigide et les résonances seraient considérablement atténuées au niveau de la cavité.
2. L'effet de raideur présenté partie 4.2.1.1 pourrait être amplifié en augmentant la raideur de la lame (en choisissant une lame en verre par exemple) et en adaptant un lien supplémentaire entre le support de l'échantillon et celui de la fibre usinée. Ce lien doit permettre une variation de longueur de cavité de $5\ \mu\text{m}$ par la force du nano-positionneur tout en rigidifiant les modes de vibrations (translation et torsion).

Pour une force d'environ $0,2\ \text{N}$ du nano-positionneur à basse température, une lame de $0,5\ \text{mm}$ de long (dépassement de la fibre usinée de la lentille percée), $2 \times 5\ \text{mm}$ de large (hauteur de la surface latérale accessible sur les supports), le premier mode en compression équation D.11 est atteint pour une épaisseur de $3\ \mu\text{m}$ d'or. Cela équivaut à une feuille d'or commerciale pliée 7 fois sur elle-même.

3. Baisser le centre de gravité et augmenter la masse de la plateforme permettrait de diminuer ses vibrations (en particulier en torsion) et le filtrage mécanique

serait a priori plus performant en utilisant de petits coussins en fibres de polyimide (Kapton) au lieu de la paille de cuivre.

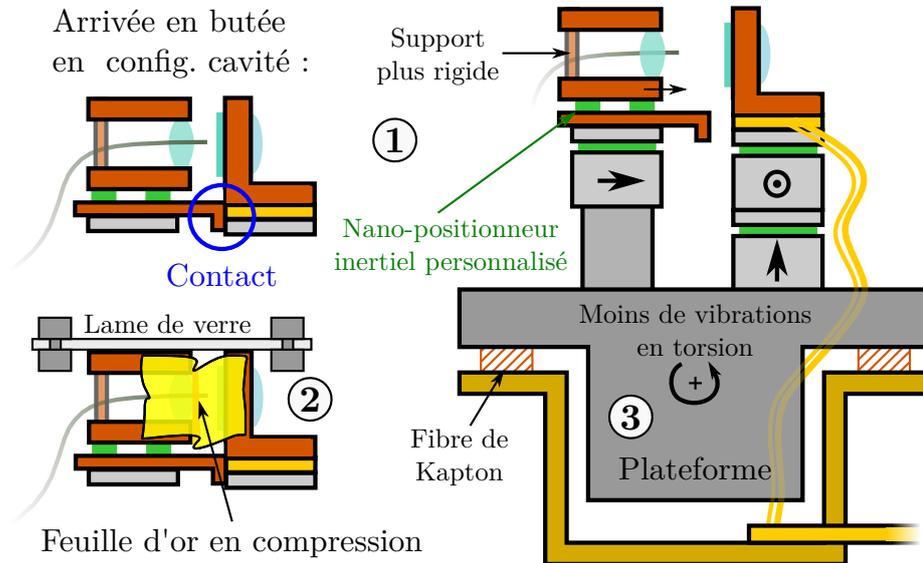


FIGURE D.18 – Schéma de principe d'un dispositif moins sensible aux vibrations. 1) Le système est rigidifié et doit arriver en butée en lorsque la cavité se referme pour court-circuiter les résonances des piles de nano-positionneurs. 2) Une feuille d'or fixée latéralement peut renforcer l'effet de raideur différentielle. 3) Baisser le centre de gravité et augmenter la masse de la plateforme tout en l'isolant avec de la fibre de Kapton diminuerait sa sensibilité aux vibrations.

D.2 Stabilisation active

D.2.1 Calibrations

Actionneur piézo-électrique

L'actionneur P-111.01T PICA associé à son amplificateur ont été caractérisés en relevant le déplacement spectral du pic de transmission de la cavité à températures ambiante et cryogénique. Dans les deux cas, le mode de la cavité a été pris en compte pour convertir le déplacement spectral en déplacement spatial.

La figure D.19 montre l'emplacement des pics de cavité pour différents modes en fonction de la tension en entrée de l'amplificateur. Un ajustement de ce balayage de cavité donne la conversion entre la tension imposée et le déplacement du micro-miroir usiné. La calibration a été réalisée entre -220 et 220 V en sortie de l'amplificateur, l'extrapolation de la course de l'actionneur sur la plage accessible est de $0,9 \mu\text{m}$ (en accord avec les spécifications). La réponse est non-linéaire à 14% sur 1 V en entrée de l'amplificateur mais, puisqu'elle reste monotone, cela ne pose pas de problème pour la stabilisation.

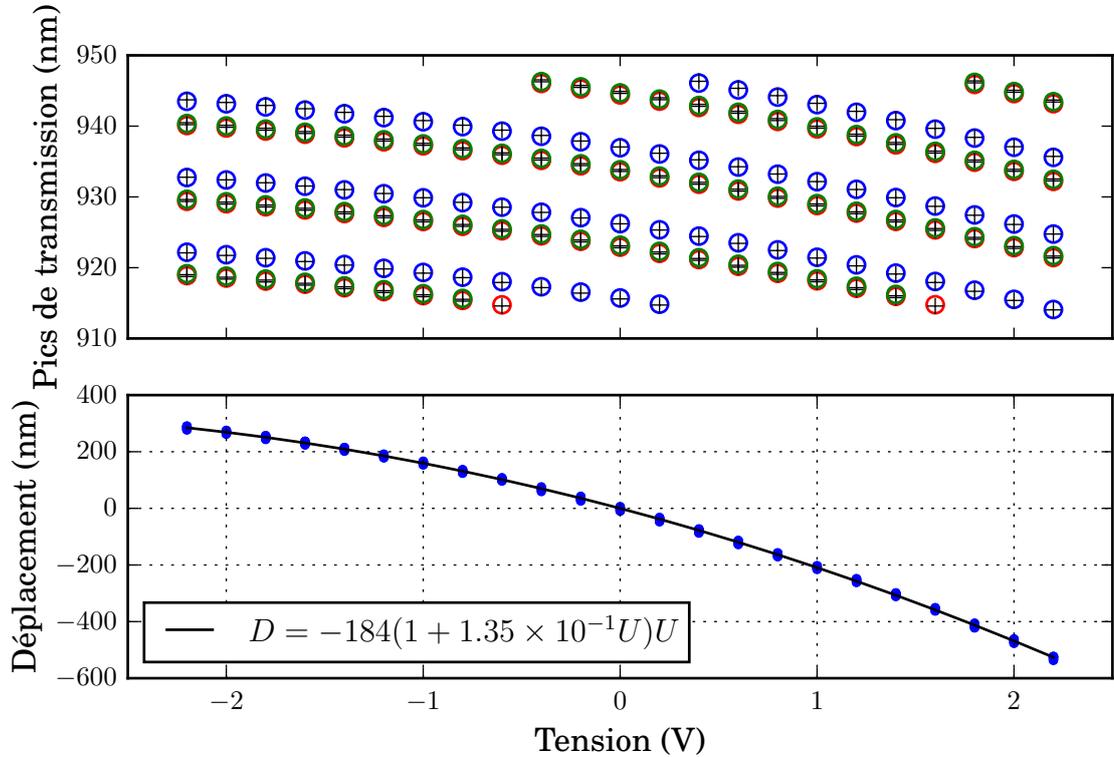


FIGURE D.19 – Caractérisation de la réponse statique de l'actionneur piézoélectrique à température ambiante. **En haut** : Mesure de la position spectrale des pics de transmission en lumière blanche d'une micro-cavité 840-980 nm de 50 μm de rayon de courbure en fonction de la tension en entrée de l'amplificateur. Les TEM₀₀ sont représentés par les cercles bleus et les TEM₀₁ ou TEM₁₀ en cercles rouges et verts. Les croix forment un ajustement des données avec la longueur de cavité initiale et son évolution quadratique avec la tension comme paramètres ajustables. **En bas** : Variation de longueur de cavité déduite des pics de transmission (points bleus) et son ajustement quadratique (ligne noire).

D'autres données ont été réutilisées pour effectuer la calibration à température cryogénique. Elle est déduite directement de la transmission de la cavité en lumière blanche figure D.20 lors d'une modulation imposée à l'actionneur. La longueur de cavité est modulée par un signal triangulaire d'amplitude ΔL et sa transmission est moyennée sur un temps suffisamment long. Le spectre de transmission est bien défini sur les flancs et permet de déduire l'amplitude de modulation en longueur d'onde $\Delta\lambda$. La longueur de cavité L vaut $\frac{p}{2}\lambda$, ainsi l'extrapolation au mode 1 de la régression linéaire figure D.20 donne le déplacement de l'actionneur piézoélectrique. Il existe un facteur 8 entre le déplacement à température ambiante et celui à température cryogénique.

L'ajustement est correct pour une modulation triangulaire. Le régime est donc quasi-statique puisque les harmoniques de la fréquence de modulation n'ont pas

été filtrées. En effet, si l'actionneur était trop lent à cette fréquence la modulation deviendrait sinusoïdale et le profil présenterait deux maxima comme lors de la mesure de la finesse de la cavité partie C.2.2.

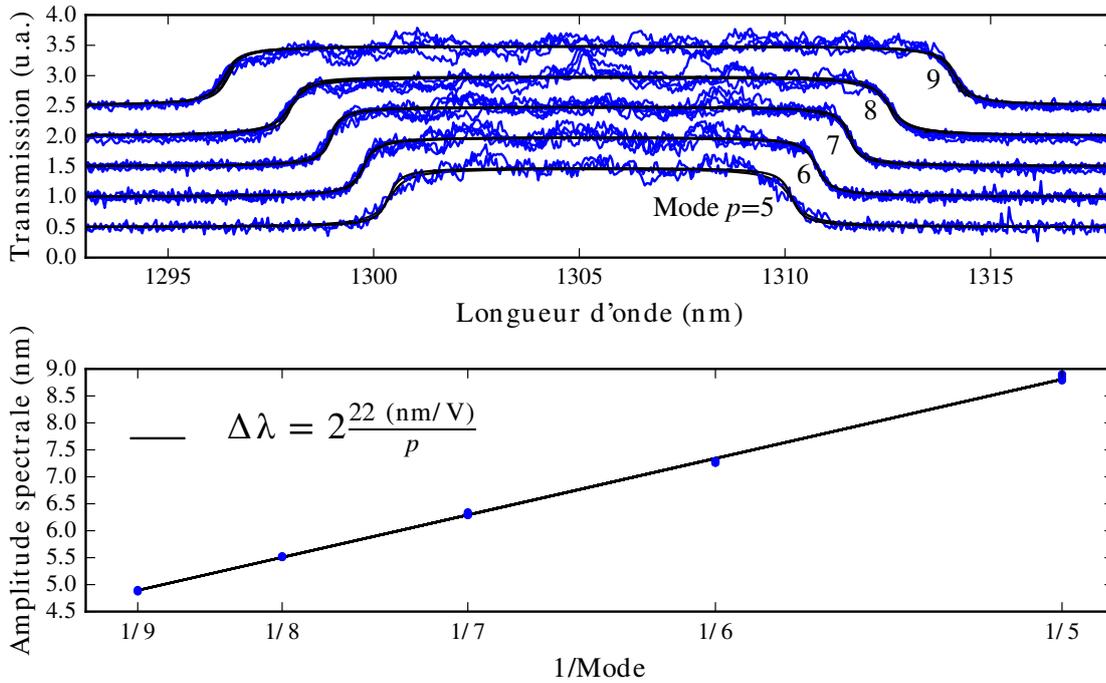


FIGURE D.20 – Caractérisation de la réponse quasi-statique de l'actionneur piézoélectrique à température cryogénique. **En haut** : Transmission en lumière blanche de la cavité pour les modes 5 à 9 (du haut vers le bas) intégrée sur 30 s pendant une modulation triangulaire de l'actionneur piézoélectrique d'amplitude 1 V et de fréquence 27 Hz. Les données expérimentales sont tracées en bleu et les ajustements en noir. **En bas** : Plage spectrale de la modulation en fonction de l'inverse du mode (points bleus). L'ajustement des données (ligne noire) donne l'amplitude de modulation spatiale de l'actionneur.

Carte FPGA

Les opérations de filtrage, le gain \mathcal{K} et la génération de signaux¹ sont assurés par une carte FPGA (Field-Programmable Gate Array) Redpitaya. Elle comporte une unité de calcul Xilinx Zynq 7010 et 512 Mo de RAM et a l'avantage d'être très peu chère (environ 250 €). Cette carte est basée sur un noyau Linux et est fournie avec des bibliothèques en accès libre. Le paquet PyRPL [298, 257] (Python RedPitaya Lockbox) développé par Leonhard Neuhaus dans l'équipe *Optomechanics and Quantum measurements* de Samuel Deléglise du Laboratoire Kastler-Brossel a

1. Une modulation est utilisée non seulement lors de la réalisation du diagramme de Bode de l'actionneur mais aussi pour construire un signal d'erreur partie 4.3.2.2.

été utilisé pour commander toutes les tâches nécessaires à la rétroaction et à son analyse (génération de signaux, soustraction, multiplication, filtrage et gain PI). Ce paquet permet d'interfacer avec Python des fonctionnalités implémentées en langage de description de matériel (ici Verilog).

Pour obtenir son bruit en statique, l'entrée est reliée à la masse et un grand nombre de mesures sont enregistrées. L'écart-type σ de la distribution obtenue donne la valeur minimale de tension à atteindre pour qu'un signal sorte du bruit. Dans ce cadre, le facteur de mérite est le nombre effectif de bits utiles (ENOB) [299]. Si σ est exprimé en unité de résolution du CAN, il est défini comme suit :

$$\text{ENOB} = 14 - \log_2(\sigma) \quad (\text{D.16})$$

La mesure a été enregistrée avec un gain unitaire en sortie de la carte à l'aide d'une autre carte d'acquisition². Le bruit en entrée de cette dernière a été évalué au préalable à $16 \mu\text{V}$ pour le calibre $\pm 0,1 \text{ V}$. L'histogramme du bruit de la carte RedPitaya est tracé figure D.21 pour deux sources d'alimentation différentes. Le nombre effectif de bits est de 13,36, il est assez proche de celui donné par le constructeur. L'amplitude minimale d'un signal en entrée est d'environ $0,19 \text{ mV}$.

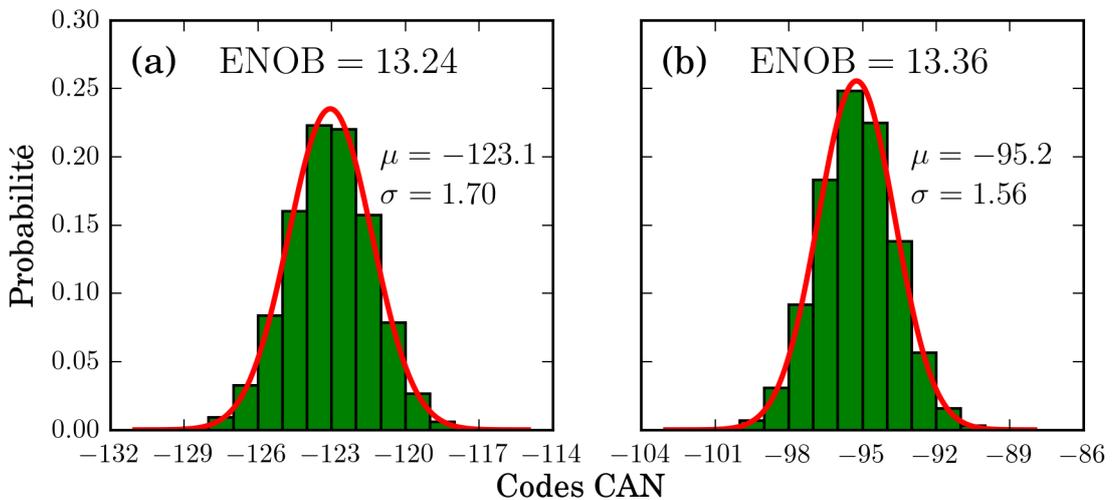


FIGURE D.21 – Distribution du bruit en entrée de la carte FPGA en unité de résolution du CAN $\sim 0,12 \text{ mV}$ pour 10^7 mesures. (a) la carte est branchée directement sur l'alimentation fournie par le constructeur, (b) l'alimentation est stabilisée par un régulateur de tensions LD1085D2T-R.

Les convertisseurs numériques/analogiques (CNA) 14 bits de la carte sont unipolaires et fournissent une tension entre 0 et 2 V . Cette tension est symétrisée juste avant la sortie en soustrayant une tension proportionnelle à la tension d'alimentation. D'après la figure D.21, la régulation de cette tension d'alimentation permet de réduire

2. DAQmx USB-6363 National Instruments

légèrement le bruit (l'ENOB passe de 13,24 à 13,36). La moyenne non nulle est due à un défaut de symétrisation de la tension de sortie. Elle est aussi modifiée car la régulation abaisse légèrement la tension d'alimentation.

Dans le cas dynamique, l'ENOB est défini à partir du rapport signal sur bruit et distorsion [299] : $\text{SINAD} = \frac{\mathcal{P}_{\text{sig}} + \mathcal{P}_{\text{bruit}} + \mathcal{P}_{\text{dist}}}{\mathcal{P}_{\text{bruit}} + \mathcal{P}_{\text{dist}}}$ (rapport de puissances moyennes). Cela donne³ :

$$\text{ENOB} = \log_2(\text{SINAD}) - \log_2\left(\sqrt{\frac{3}{2}}\right)$$

Les mesures du SINAD ont été réalisées avec un analyseur de spectre commercial N9010B EXA Keysight. L'alimentation est régulée. Un signal sinusoïdal est généré au sein de la carte FPGA puis ajouté numériquement au signal d'entrée. Pour une amplitude maximale, l'ENOB est de $10,9 \pm 0,1$ bits entre 10 Hz et 14 kHz. La figure D.22 donne l'évolution du nombre de bits occupés par le signal en fonction de l'amplitude pour une fréquence de 79 Hz. Plus l'amplitude est faible et plus la distorsion est importante : le coefficient directeur est supérieur à 1 ($\sim 1,2$ figure D.22). L'amplitude minimale d'un signal généré est de 1,2 mV (2,5 mV crête à crête).

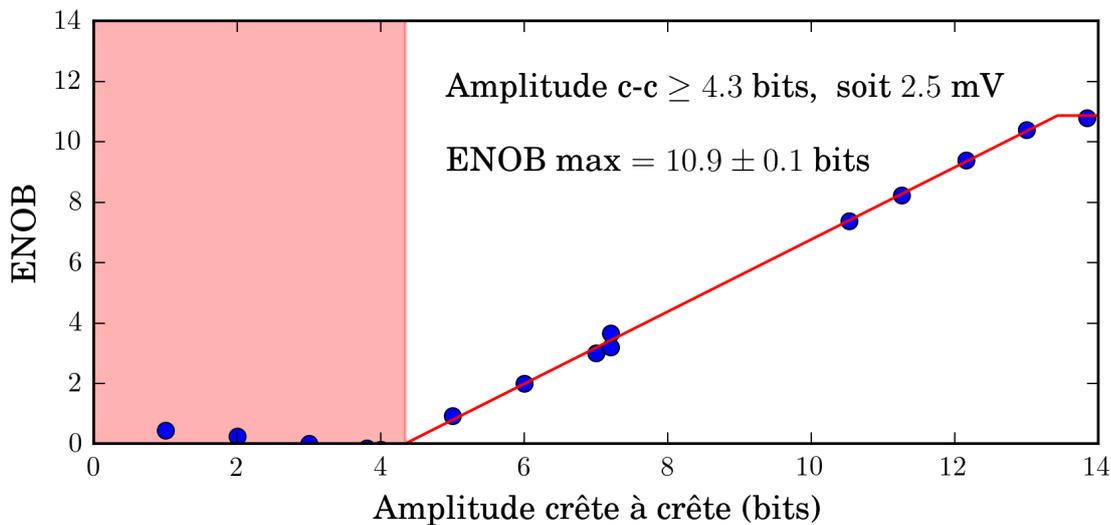


FIGURE D.22 – Nombre de bits effectifs d'un signal sinusoïdal généré au sein de la carte FPGA en fonction de son amplitude unité de résolution du CNA. Une régression linéaire bornée est ajustée à la courbe avec un ENOB maximal fixé à 10.9, elle renvoie une amplitude minimale crête à crête de 2,5 mV pour une génération de signaux.

Le nombre de bits indiqué par le constructeur en régime dynamique est de 13. Le régulateur de tension n'est pas suffisant pour retrouver cette valeur. Il est possible

3. Le $\sqrt{\frac{3}{2}}$ provient du bruit de quantification d'un CNA idéal.

d'atteindre un ENOB de 12 bits en prélevant la tension de sortie directement sur le CNA ou en utilisant une alimentation stabilisée [300, 249]. Cela n'a pas été mis en place dans cette thèse.

D.2.2 Signaux d'erreur standards

Un signal d'erreur convenable doit vérifier les critères suivants :

- Il doit être localement proportionnel à $L - L_{\text{cons}}$ pour que le gain de la rétroaction reste adapté quelle que soit l'amplitude des fluctuations.
- Il doit rester du même signe que $L - L_{\text{cons}}$ sur la plus grande plage possible. Si le signal d'erreur change de signe, la rétroaction amplifie les fluctuations au lieu de stabiliser le système.
- Sa mesure doit être suffisamment rapide pour suivre les fluctuations pour éviter le problème de déphasage expliqué dans la partie 4.3.1.2.

Stabilisation sur le flanc d'un pic de transmission

Avant la généralisation des techniques de Pound-Drever-Hall et de Hänsch-Couillaud ou dans le cas d'une cavité de finesse moyenne ($\mathcal{F} \sim 10^2$), les variations de longueur de cavité sont tirées directement de l'intensité réfléchie par la cavité près d'un flanc de pic de transmission [251, 301]. Ce signal d'erreur est centré sur zéro en soustrayant une référence prélevée sur le laser d'excitation représentée figure D.23. D'après l'équation D.2.2, il est bien linéaire sur une plage de l'ordre de la largeur d'un pic de transmission et la mesure par photodiode est particulièrement rapide (>100 kHz). Il s'agit de la mesure d'erreur la plus simple à mettre en œuvre.

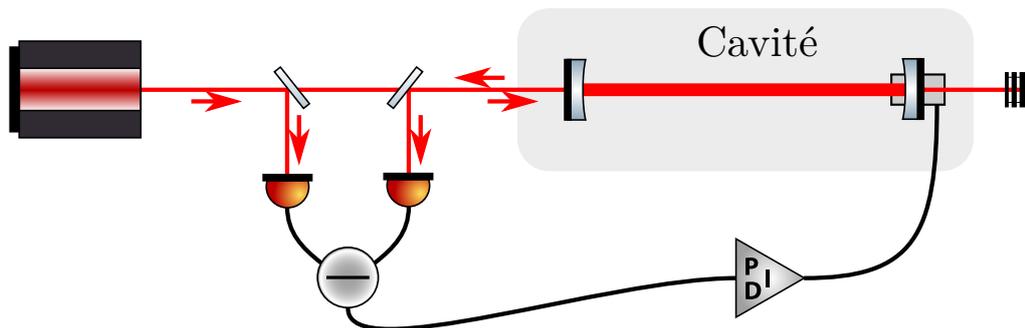


FIGURE D.23 – Schéma d'une stabilisation sur le flanc d'une résonance de la cavité. Le signal d'erreur provient de la différence entre la réflexion de la cavité et une référence prélevée sur le laser d'excitation.

Néanmoins, puisque le faisceau de référence et celui réfléchi sur la cavité ne parcourent pas le même chemin optique, cette technique de stabilisation est assez peu robuste aux perturbations extérieures (dérive de l'injection dans la cavité ou du

ratio signal/référence). De plus, ce signal d'erreur n'a le même signe que $L - L_{\text{cons}}$ que sur la largeur du pic de cavité. Pour cette raison, cette méthode n'est pas utilisée pour stabiliser une cavité de finesse élevée.

Pound-Drever-Hall

Le signal d'erreur le plus couramment utilisé pour stabiliser une cavité est celui de PDH. Il est particulièrement employé pour asservir la fréquence d'un laser sur une cavité ultra-stable [252] ou une transition atomique [250]. Le principe est de comparer la transmission de la cavité pour deux bandes latérales (voir figure D.25a) générées en modulant la phase du laser. Dans notre cas, le laser est considéré comme stable et l'asservissement agit sur la longueur de cavité. La méthode se résume par le dispositif présenté figure D.24 un laser modulé excite la cavité et le signal d'erreur est obtenu par détection synchrone de l'intensité réfléchie.

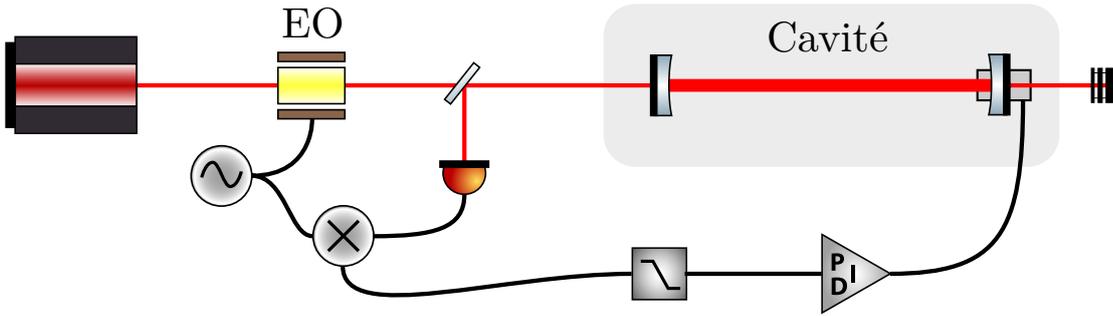


FIGURE D.24 – Schéma d'un asservissement de cavité par méthode PDH. La phase d'un laser est modulé par effet électro-optique (EO) puis envoyé dans la cavité. Une partie de l'intensité réfléchie est détectée de façon synchrone par une photodiode. Ce signal d'erreur est ensuite utilisé via un gain PID (voir partie 4.3.1.2) pour la boucle de rétroaction.

Pour une faible modulation de phase de pulsation Ω , l'amplitude du laser présente deux pics latéraux (voir figure D.25a) et s'écrit :

$$E = E_0 \left[e^{i\omega t} + \alpha i \left(e^{i(\omega+\Omega)t} - e^{i(\omega-\Omega)t} \right) \right] \text{ avec } \alpha \ll 1 \quad (\text{D.17})$$

Or, pour des miroirs de Bragg de réflexion R_B en intensité, le coefficient de réflexion en amplitude d'une cavité Fabry-Pérot de longueur L est :

$$r = R_B^{\frac{1}{2}} \left(1 + \frac{e^{2i\omega \frac{L}{c}}}{1 - R_B e^{2i\omega \frac{L}{c}}} \right) \quad (\text{D.18})$$

La partie imaginaire de ce coefficient de réflexion vaut :

$$\Im(r) = \frac{R_B^{\frac{1}{2}}}{(1 - R_B)^2} \left(\frac{\sin(2\omega \frac{L}{c})}{1 - F \sin^2(\omega \frac{L}{c})} \right) \quad (\text{D.19})$$

Elle est tracée figure D.25c et varie linéairement à proximité d'une résonance.

Cette dispersion est utilisée pour obtenir le signal d'erreur. D'après D.17, l'amplitude de l'onde réfléchie vaut :

$$E = E_0 \left[r(\omega)e^{i\omega t} + \alpha i \left(r(\omega + \Omega)e^{i(\omega+\Omega)t} - r(\omega - \Omega)e^{i(\omega-\Omega)t} \right) \right] \quad (\text{D.20})$$

Le signal d'erreur est le signal modulé à Ω . Il est démodulé par une détection synchrone ce qui donne :

$$s \propto \alpha \left[r^*(\omega)r(\omega + \Omega) - r^*(\omega)r(\omega - \Omega) \right] - c.c.$$

Pour une finesse de 5000 et le plus petit mode de cavité atteint expérimentalement (le mode 5), la largeur du pic de cavité est d'environ 0,05 nm soit 9 GHz et pour une finesse de 750, la largeur du pic est de 0,05 nm soit 61 GHz. Expérimentalement, une modulation EO à 10 GHz reste possible mais il est difficile d'atteindre 60 GHz.

Si la fréquence de modulation Ω est inférieure à la FWHM du pic de cavité $\frac{\omega_0}{Q}$, $s \sim \alpha \Omega r^*(\omega) \frac{dr}{d\omega}(\omega_0) - c.c. = \alpha \Omega \left| \frac{dr}{d\omega}(\omega_0) \right| \Im \mathbf{m}(r)$. Le signal d'erreur obtenu s'apparente localement à la partie imaginaire du coefficient de réflexion de la cavité tracée figure D.25c. Dans ce cas, le signal PDH a pour seul avantage moins sensible au bruit extérieur que celui obtenu sur flanc de pic grâce à la détection synchrone.

Pour une modulation plus rapide, le signal d'erreur a une forme plus complexe mais a l'avantage de conserver le même signe que $L - L_{\text{cons}}$ sur une plage plus large que le pic de cavité. Cet avantage rend la stabilisation par méthode de PDH particulièrement robuste dans le cas d'une cavité haute finesse. Ce signal d'erreur, représenté pour plusieurs modes figure D.25b reste proportionnel à l'écart $L - L_{\text{cons}}$ pour de faibles fluctuations.

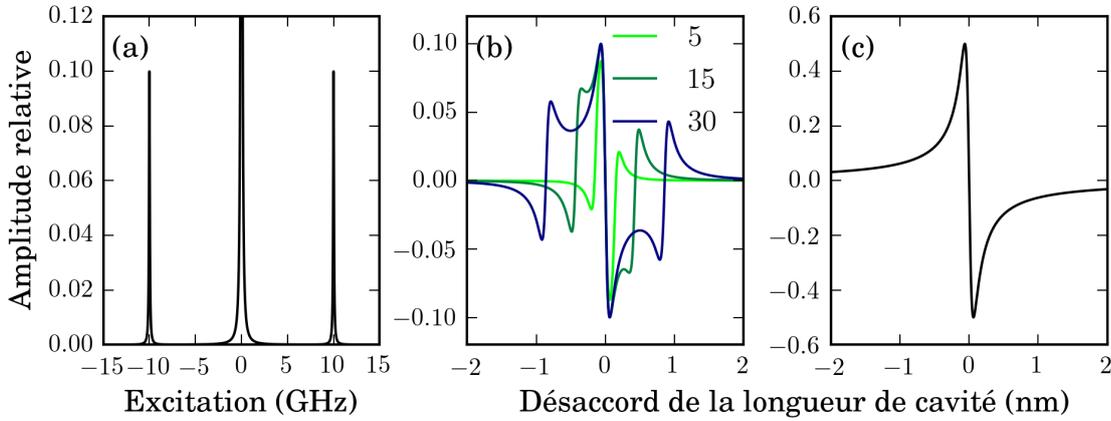


FIGURE D.25 – (a) Simulation de l’intensité normalisée d’une diode laser centré à 0,95 eV (1310 nm) et modulée en phase à 10 GHz. Des pics latéraux apparaissent à la fréquence de modulation. (b) Simulation de signaux d’erreur obtenus par la méthode PDH sur une cavité de finesse d’environ 5000 pour différents modes longitudinaux. (c) Partie dispersive du coefficient de réflexion de la cavité.

Cette technique a déjà été utilisée pour stabiliser des micro-cavité fibrées [302, 303, 297] de hautes finesesses.

La méthode PDH est particulièrement robuste mais nécessite une partie électronique relativement complexe du fait de la modulation à haute fréquence (\sim GHz). Un signal d’erreur performant mais moins contraignant d’un point de vue électronique peut aussi être construit en suivant la méthode de Hänsch et Couillaud.

Hänsch-Couillaud

Pour mettre en place la méthode HC [253], la cavité à stabiliser doit présenter une certaine biréfringence (voir figure D.26).

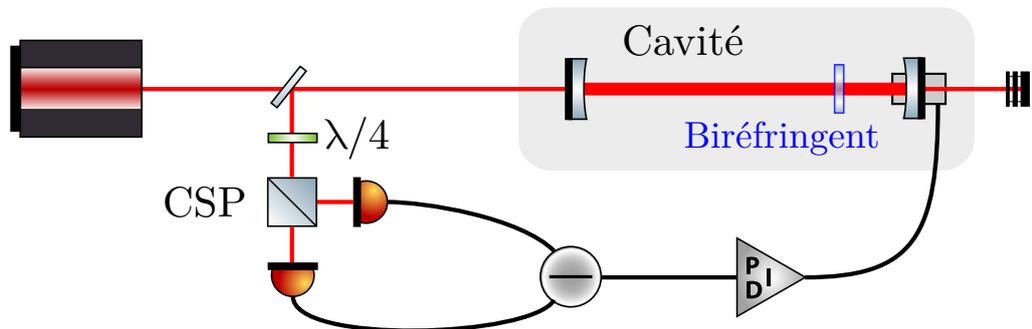


FIGURE D.26 – Schéma d'un asservissement de cavité par méthode HC. Si la cavité optique est légèrement biréfringente alors il existe deux modes résonnants correspondant aux deux axes neutres. L'analyse de la polarisation elliptique en réflexion permet d'obtenir directement un signal d'erreur utilisable pour stabiliser la cavité.

La biréfringence provoque une levée de dégénérescence $\delta\nu$ de la résonance de deux modes de polarisation orthogonale correspondant aux axes neutres de la cavité. Les intensités de ces deux modes peuvent être séparées en analysant la polarisation elliptique en réflexion ou en transmission de la cavité. Leur différence donne accès à un signal comparable à la dérivée d'un pic de transmission (tant que la largeur des pics est supérieure à $\delta\nu$). À proximité d'une résonance comme sur la figure D.27, cette différence est linéaire et sert de signal d'erreur.

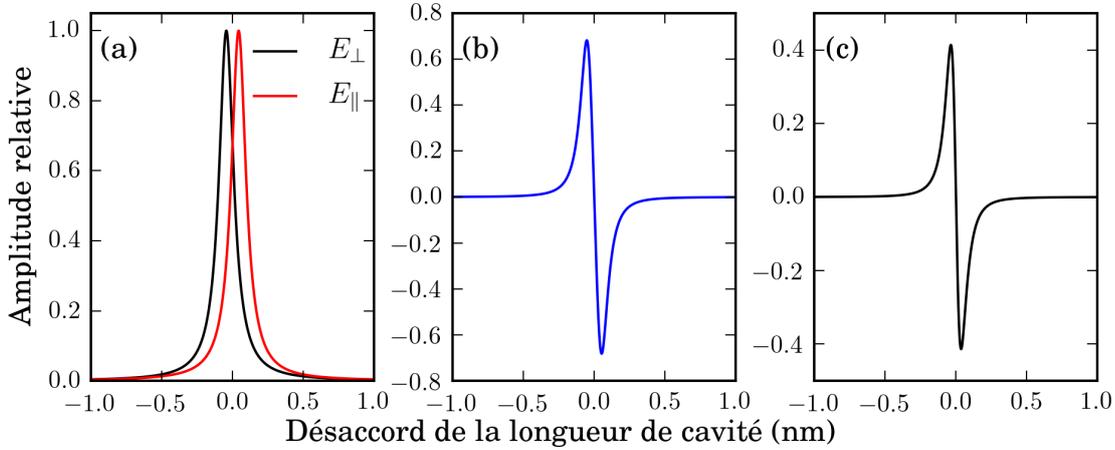


FIGURE D.27 – (a) Pics de transmission en lumière blanche d’une cavité en fonction de la longueur de celle-ci. pour le mode $p = 5$. La finesse est d’environ 5000 et correspond au miroir de Bragg défini dans la partie 3.2.2.2. Une légère biréfringence est prise en compte et provoque une séparation des pics d’environ 6 GHz. (b) Simulation de signaux d’erreur obtenus par la méthode HC. Contrairement à la méthode PDH, le signal est indépendant du mode longitudinale de la cavité. (c) Dérivée de l’intensité d’un pic de transmission en fonction de la longueur de cavité normalisé par $k\mathcal{F}$ où k est le vecteur d’onde et \mathcal{F} la finesse.

Le signal d’erreur est proportionnel à l’anisotropie de la cavité. Cependant, il reste possible d’utiliser cette technique pour des cavités isotropes en modulant le laser pour un seul axe de polarisation (verticale ou horizontale par exemple). Le dispositif HC reste moins contraignant que le PDH car un modulateur acousto-optique peut suffire et car l’obtention du signal d’erreur ne requière pas de détection synchrone [304].

Une levée de dégénérescence en polarisation pour les modes TEM_{00} existe dans les micro-cavités fibrées. Elle est majoritairement due à l’ellipticité du miroir usiné [305] et vaut $\delta\nu = \frac{c}{4\pi kL} \frac{\mathcal{R}_x - \mathcal{R}_y}{\mathcal{R}_x \mathcal{R}_y} = \frac{c}{(2\pi)^2 p} \frac{\mathcal{R}_x - \mathcal{R}_y}{\mathcal{R}_x \mathcal{R}_y}$ où p est le mode considéré et \mathcal{R}_x et \mathcal{R}_y sont les rayons de courbures des axes du miroir. Ainsi, le rapport entre $\delta\nu$ et la largeur du pic de transmission $\Delta\nu$ vaut $\frac{\delta\nu}{\Delta\nu} = \mathcal{F} \frac{\lambda}{(2\pi)^2} \frac{\mathcal{R}_x - \mathcal{R}_y}{\mathcal{R}_x \mathcal{R}_y}$ et est indépendant du mode.

$\frac{\mathcal{R}_x - \mathcal{R}_y}{\mathcal{R}_x \mathcal{R}_y}$ vaut $(1,0 \pm 0,7) \times 10^{-2} \mu\text{m}^{-1}$ dans le cas des fibres usinées dans cette thèse et, en particulier, $0,4 \times 10^{-2} \mu\text{m}^{-1}$ pour la fibre 55/84 grâce à laquelle la plupart des résultats de cette thèse ont été obtenus. Cela correspond à $\delta\nu \approx 0,7\Delta\nu$ pour une finesse espérée de 5000 (voir figure D.27) et à $\delta\nu \approx 0,1\Delta\nu$ pour une finesse de 750.

La méthode de HC a déjà été mise en place sur ce type cavité pour une finesse de 200 dans l’équipe *Nano-Optics* de Vahid Sandoghdar [225]. Les vibrations de la micro-cavité ont d’abord été réduite à une amplitude de 0,6 nm par des moyens passifs (soit $1/3$ de leur largeur de pic de transmission) puis la stabilisation leur a permis d’atteindre 0,1 nm.

Une rétroaction peut être implémentée pour des vibrations de fréquences inférieures à 200 Hz tant que la mesure permet de maintenir le signal en entrée et en sortie de la carte FPGA nettement au dessus du bruit électronique. Plusieurs choix sont possibles pour construire un signal d'erreur : la stabilisation sur un flanc de pic ou les méthodes de PDH ou de HC. Ces dernières sont plus robustes aux perturbations extérieures à la cavités mais sont aussi plus lourdes à mettre en place (elles nécessitent soit une électronique rapide soit un bon contrôle de la polarisation). La partie suivante détaille une tentative de stabilisation active de la cavité.

D.2.3 Distorsion du signal d'erreur

La linéarité tirée de la relation 4.12 n'est valable que sous certaines hypothèses. En effet, en supposant que δL est une perturbation centrée sur la fréquence f_{vib} , $(L - L_{\text{cons}})^2$ donne aussi un terme en $2f_{\text{vib}}$ représenté figure D.28 d'amplitude supérieure⁴ à celle du terme en $f_{\text{mod}} \pm f_{\text{vib}}$. Il faut donc que la constante de temps τ vérifie les inégalités :

$$\frac{2\pi}{\tau} > f_{\text{vib}} \text{ et } f_{\text{mod}} - \frac{2\pi}{\tau} > 2f_{\text{vib}} \quad (\text{D.21})$$

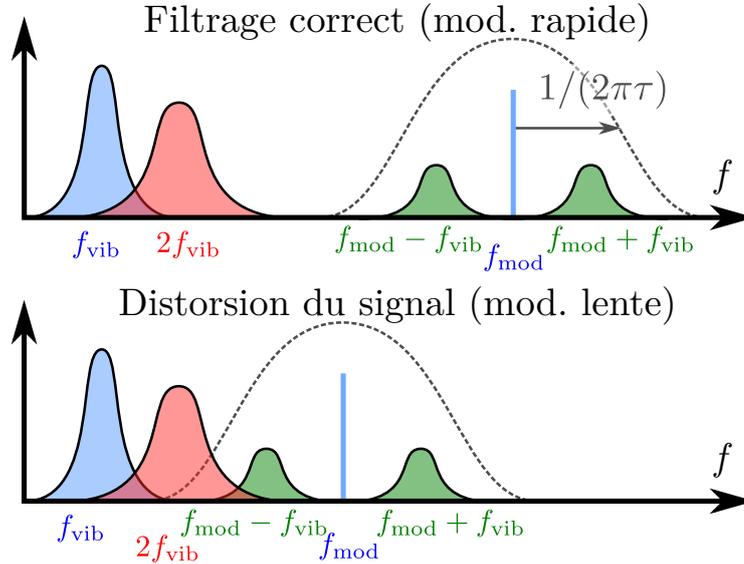


FIGURE D.28 – La transformée de Fourier de $(L - L_{\text{cons}})$ est en bleu, la partie du signal proportionnelle aux vibrations est en vert et, à leur carré, en rouge (le terme en $2f_{\text{mod}}$ n'est pas représenté). Le filtre passe-bas de la détection synchrone est centré sur la fréquence de modulation f_{mod} .

La fréquence de modulation doit être suffisamment élevée pour éviter d'introduire des non-linéarités. La figure D.29 montre l'effet d'une modulation de trop basse

4. l_{mod} est choisi inférieur à δL pour que la modulation ne prennent pas le pas sur les vibrations.

fréquence sur la pureté du signal (l'absence de distorsion). Les non-linéarités ont pour effet de réduire la bande passante fiable du signal d'erreur. Pour cette raison, un filtrage passe-bas numérique avec une fréquence de coupure de 300 Hz est ajouté sur la carte FPGA avant l'entrée du gain \mathcal{K} . Cette nouvelle bande passante est suffisante puisqu'au moins 80% des vibrations sont de fréquence inférieure à 200 Hz (voir figure 4.12).

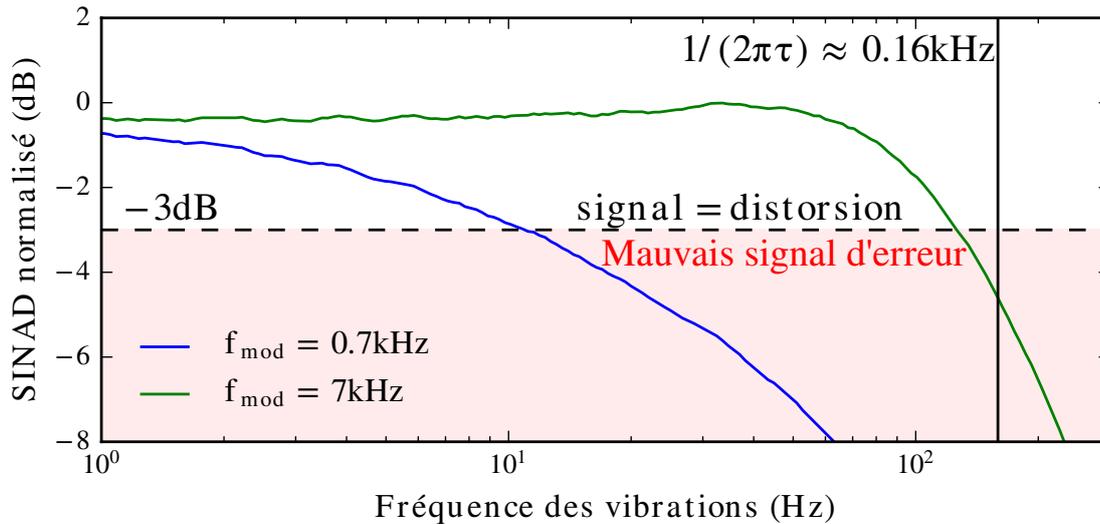


FIGURE D.29 – Simulation du signal sur bruit et distorsion (SINAD) en fonction de la fréquence des vibrations f_{vib} pour deux fréquences de modulation : 0,7 Hz et 7 kHz. La zone rouge définit la partie du graphique où le signal est plus faible que la distorsion. Pour que la démodulation soit acceptable pour les deux fréquences $\tau = 1$ ms au lieu de $\tau = 0,3$ ms. Cela correspond à une fréquence de coupure de 159 Hz. La plage dans laquelle le signal reste proportionnel aux vibrations est proche de la fonction de transfert de la détection synchrone pour $f_{\text{mod}} = 7$ kHz alors que les non-linéarités dominent dès 10 Hz pour $f_{\text{mod}} = 0,7$ kHz.

D.2.4 Stabilisation en amplitude du laser d'excitation

La stabilisation en intensité du laser d'excitation permet de diminuer le bruit du signal d'erreur hors résonance. Par ailleurs, il s'agit d'une occasion de tester la carte FPGA dans le cas d'une stabilisation moins complexe que celle de la micro-cavité. Le dispositif employé est décrit sur la figure D.30. Un Modulateur Acousto-Optique (AOM) est utilisé pour contrôler l'intensité laser. En sortie de l'AOM, une partie de l'intensité du laser est déviée d'un angle θ dépendant de la fréquence de modulation (ici 80 MHz) et de la longueur d'onde. La proportion de l'intensité déviée dépend de l'amplitude de la modulation de l'AOM, il s'agit du paramètre contrôlé par la carte FPGA.

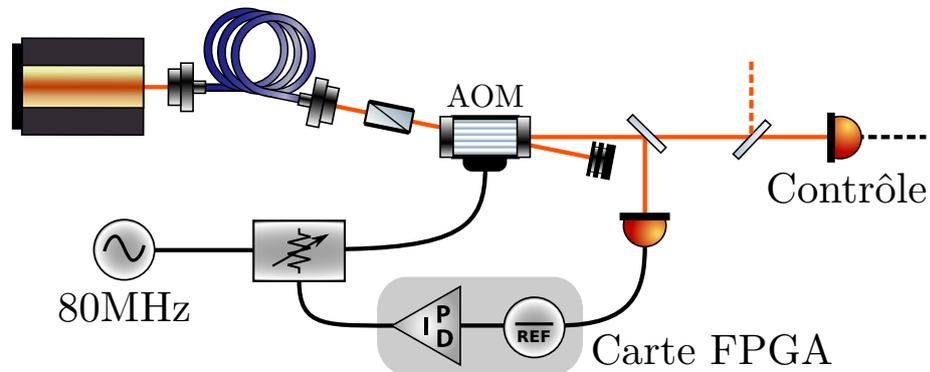


FIGURE D.30 – L’amplitude de l’oscillateur d’un modulateur acousto-optique (AOM) est commandé par la carte FPGA RedPitaya. Une partie de l’intensité du laser est prélevée en sortie du AOM et envoyée sur une photodiode rapide. Ce signal est filtré numériquement et sa différence avec une valeur consigne est envoyée vers l’atténuateur commandé via un gain Proportionnel-Intégral. La mesure de l’intensité du laser se fait avec une autre photodiode que celle incluse dans la boucle de rétroaction.

Les intensités sans AOM et avec stabilisation sont comparées sur la figure D.31. Pour un gain proche de l’optimisation de Ziegler et Nichols (voir la partie 4.3.3.1) l’écart-type atteint $\sigma \approx 0,11\%$. Les fluctuations d’intensité sont en moyenne atténuées d’un facteur 20, ce facteur atteint 500 à 0,1 Hz.

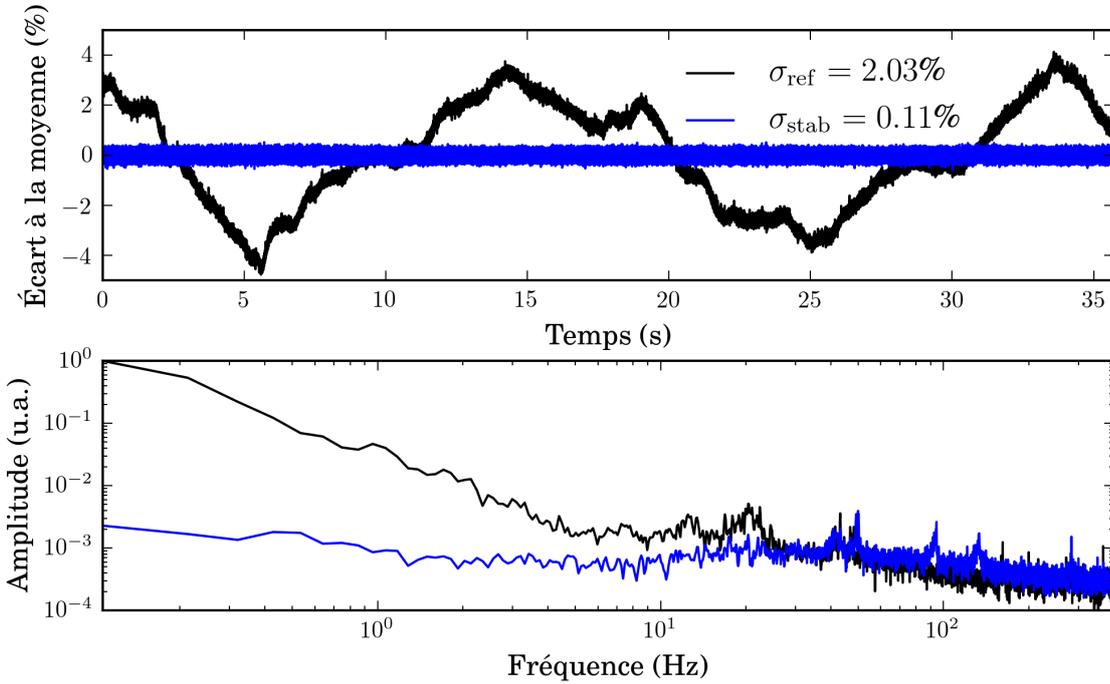


FIGURE D.31 – Fluctuations d’intensité du laser à 856 nm et leurs transformées de Fourier dans les cas sans MAO (en noir) et en boucle fermée avec des coefficients proches de ceux de Ziegler et Nichols (en bleu).

Toutefois, l’AOM ajoute aussi du bruit électronique en boucle ouverte : l’écart-type de l’intensité σ passe de 2% à 2,4%. La stabilisation du laser en intensité pourrait donc encore être améliorée en réduisant le bruit introduit par l’AOM (en ajoutant un réjecteur de bande à 50 Hz par exemple). La carte FPGA n’est donc pas à l’origine des instabilités observées partie 4.3.3.1 et permet la comparaison des deux signaux d’erreur de basse et moyenne finesses.

D.2.5 Problème de phase non minimale

La plupart des mécanismes menant à une instabilité du système en boucle fermée ont été abordés partie 4.3.1.2. Toutefois, une instabilité peut aussi survenir dans un cas pathologique où la fonction de transfert en boucle ouverte présente un zéro dans la partie droite du plan complexe [246].

La fonction de transfert \mathcal{KSP} peut s’écrire sous la forme $\frac{\mathcal{N}(s)}{\mathcal{D}(s)}$ où \mathcal{N} et \mathcal{D} sont des polynômes de s . Les racines de \mathcal{N} sont les zéros de \mathcal{KSP} et celles de \mathcal{D} ses pôles. Une instabilité apparaîtrait dans le système si un de ces *pôles* était dans la partie droite du plan complexe (partie réelle positive). La fonction de transfert en boucle fermée s’écrit $\frac{\mathcal{KSP}}{1+\mathcal{KSP}} = \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}+\mathcal{D}}$. Ainsi, plus le gain K_p est grand plus les nœuds de la fonction de transfert en boucle fermée tendent vers les zéros de la fonction de transfert en boucle ouverte. Une instabilité peut apparaître si un des *zéros* de \mathcal{KSP}

est dans la partie droite du plan complexe. Cette situation est difficile à identifier car elle n'apparaît pas dans les résonances visible dans un diagramme de Bode. En guise d'illustration, les fonctions de transferts $\mathcal{G}_1 = 1$ et $\mathcal{G}_2 = \frac{1-s}{1+s}$ ont toutes deux un gain de 1 mais le retard de phase de \mathcal{G}_2 sur \mathcal{G}_1 tend vers 180° à haute fréquence. Dans le domaine de la stabilisation active, cela s'appelle un *problème de phase non minimale*⁵ : il n'y a plus de lien direct comme la relation de Kramers-Kronig [306] entre le gain et la phase du diagramme de Bode de la boucle ouverte.

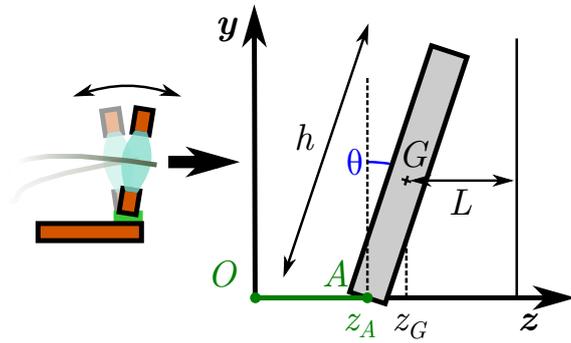


FIGURE D.32 – Pendule élastique dont le point de pivot A peut glisser sur l'axe z . La barre représente le support de la lentille percée et G marque à la fois le barycentre du pendule et l'emplacement de la fibre usinée : la longueur de cavité vaut z_G . Le support est relié en O au point de pivot A par l'actionneur piézoélectrique (en vert).

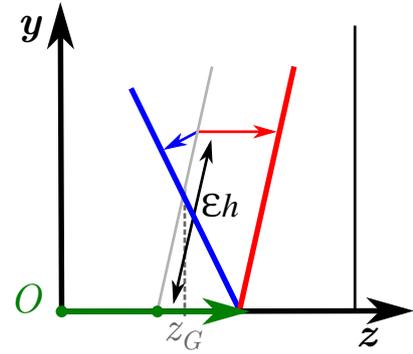


FIGURE D.33 – À fréquence basse devant la résonance du pendule une translation par l'actionneur se fait en bloc : la longueur de cavité diminue. À haute fréquence, l'abscisse z_G du barycentre ne bouge pas et le pendule pivote : la longueur de cavité augmente. Il y a un changement de signe de la réponse du système si la position de la fibre usinée est au-dessus du barycentre du pendule.

Pour illustrer ce problème de phase non minimale, considérons un modèle simple pour décrire le comportement du support de la fibre déplacé par l'actionneur piézoélectrique. Le support de la lentille forme un pendule élastique excité comme sur la figure D.32. L'objectif est d'écrire la fonction de transfert C reliant le déplacement de la fibre (fixée au barycentre G du pendule) à la tension appliquée sur le piézoélectrique. Le lagrangien du système s'écrit :

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} J_G \dot{\theta}^2 + \frac{1}{2} M \dot{z}_G^2 - \frac{1}{2} \Gamma \theta^2 \quad \text{où} \quad J_G = \frac{1}{12} M h^2 \quad (\text{D.22})$$

5. Dans un système sans zéro dans la partie droite du plan complexe, le retard de phase vaut approximativement la dérivée de la magnitude par le logarithme de la fréquence multipliée par $\pi/2$ [306]. Dans cette situation, le retard de phase est minimal.

Pour de petits déplacements, $\dot{z}_G \approx \dot{z}_A + \frac{h}{2}\dot{\theta}$. L'équation de mouvement est la suivante :

$$J_A \ddot{\theta} + \Gamma \theta = -\frac{1}{2} M h \ddot{z}_A \text{ où } J_A = \frac{1}{3} M h^2 \quad (\text{D.23})$$

En transformée de Laplace, l'équation D.23 donne :

$$\frac{h\theta}{z_A} = -\frac{M h s^2}{2 J_A s^2 + \Gamma} = -\frac{3}{2} \frac{s^2}{s^2 + \frac{\Gamma}{J_A}} \quad (\text{D.24})$$

Ainsi, en notant \mathcal{P}_a la réponse de l'actionneur piézoélectrique seul, le contrôle en position de la longueur de cavité vaut :

$$\mathcal{P} = \mathcal{P}_a(s) \frac{z_G}{z_A} = \mathcal{P}_a(s) \left(\frac{s^2/4 + \frac{\Gamma}{J_A}}{s^2 + \frac{\Gamma}{J_A}} \right) \quad (\text{D.25})$$

Dans ce cas, les zéros dus au pendule élastique sont imaginaires purs, il n'y a pas de problème de phase non minimale. Pour prendre en compte une asymétrie du système, imaginons maintenant que la fibre usinée est fixée à une distance ϵh entre l'actionneur piézoélectrique et l'extrémité du support (voir figure D.33). La position de la cavité vaut $z = z_A + \epsilon h \theta$ et

$$\frac{\mathcal{P}}{\mathcal{P}_a} = \frac{\left(1 - \frac{3}{2}\epsilon\right) s^2 + 1}{s^2 + 1} \text{ avec } s \text{ en unité de } \sqrt{\frac{\Gamma}{J_A}} \quad (\text{D.26})$$

$\epsilon = 0$ correspond à une longueur de cavité totalement solidaire du piézoélectrique et $\epsilon = 1/2$ au cas traité précédemment. À partir de $\epsilon = \frac{2}{3}$, les zéros de $\frac{\mathcal{P}}{\mathcal{P}_a}$ passent dans la partie droite du plan complexe, un problème de phase non minimale apparaît. Le diagrammes de Bode de \mathcal{P} a été tracé figure D.34 avec un facteur de qualité de 10 pour gagner en lisibilité et \mathcal{P}_a une fonction du second ordre résonant à plus haute fréquence ($\mathcal{P}_a = \frac{\omega_0^2}{s^2 + \omega_0^2}$ où ω_0 est la résonance de l'actionneur, ici $\omega_0 = 5\sqrt{\frac{\Gamma}{J_A}}$). La fonction de transfert est comparée à un problème mécanique similaire ne présentant pas de problème de phase non minimale. En effet, toute fonction de transfert peut s'écrire sous la forme d'un produit d'un filtre de phase minimale par un filtre déphaseur [306] :

$$\frac{\mathcal{P}}{\mathcal{P}_a} = \underbrace{\frac{\left|1 - \frac{3}{2}\epsilon\right| s^2 + 1}{s^2 + 1}}_{\text{Phase minimale}} \underbrace{\frac{\left(1 - \frac{3}{2}\epsilon\right) s^2 + 1}{\left|1 - \frac{3}{2}\epsilon\right| s^2 + 1}}_{\text{Déphaseur}} \quad (\text{D.27})$$

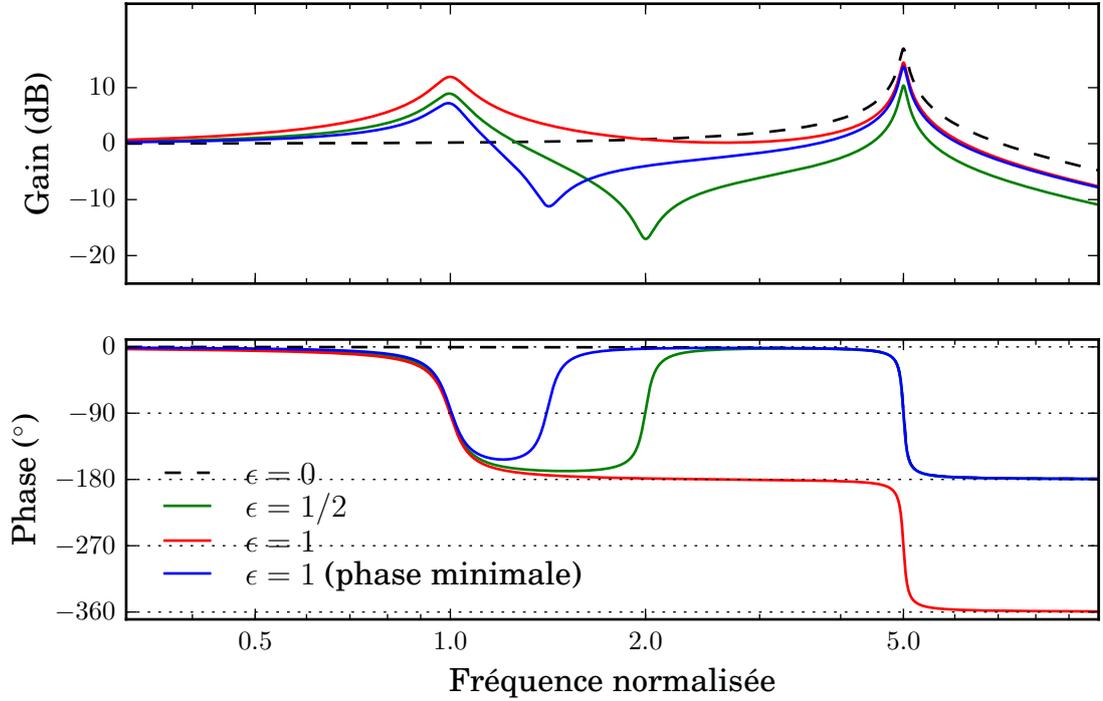


FIGURE D.34 – Tracé du diagramme de Bode de la fonction de transfert \mathcal{P} définie équation D.26. Lorsque la fibre usinée est solidaire de l’actionneur piézoélectrique ($\epsilon = 0$), il n’y a évidemment aucun problème de phase. Cependant si $\epsilon \neq 0$, un retard de phase est observé mais, tant que $\epsilon < 2/3$, il est associé à une chute du gain : le problème sur la rétroaction n’est pas significatif. À partir de $\epsilon = 2/3$, un problème de phase non minimale apparaît : un retard de phase définitif de π est observé sans qu’il n’y ait de chute de gain, le système devient instable en boucle fermée.

Il est possible d’expliquer le saut de phase entre les signaux d’erreur de référence et de stabilisation observé figure 4.29 de cette manière. La fréquence de 63 Hz répond aux critères du problème de phase non minimale : un déphasage de π est visible en boucle ouverte et une résonance est observée en boucle fermée pour un gain suffisamment grand (voir figures 4.29 et 4.22).

En effet, d’après l’équation D.26, la phase de $z_A + \frac{h}{2}\theta$ est minimale tandis que celle de $(z_A + \frac{h}{2}\theta) + \frac{h}{2}\theta$ ne l’est pas. Or, les variations de l’angle θ peuvent prendre une part plus importante dans la mesure basse finesse (hors résonance) que pour celle de finesse élevée (signal de référence). Comme illustré figure D.35, l’angle relatif des miroirs peut modifier la figure d’interférence à basse finesse tandis que, pour une finesse élevée, le mode reste orthogonal au miroir plan et n’est que peu sensible aux variations de θ . Ce phénomène est d’autant plus marqué en prenant en compte le mouvement du nano-positionneur inertiel. Dans ce cas, le système est analogue à un pendule élastique double et l’angle de la fibre peut varier sans que la longueur de cavité ne change (voir la figure D.36).

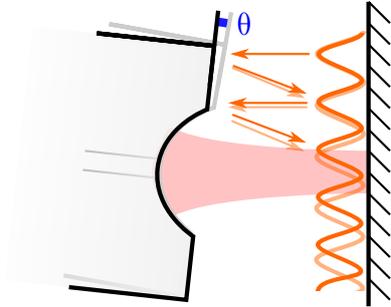


FIGURE D.35 – Deux situations où l'angle θ est différent pour une même longueur de cavité, $z_A + \frac{h}{2}\theta = \text{cte}$. Pour une finesse élevée, le mode (en rouge) ne change pas et reste orthogonal au miroir plan. Pour une finesse faible, les interférences (en orange) sur les miroirs peuvent être sensibles à l'angle θ varie.

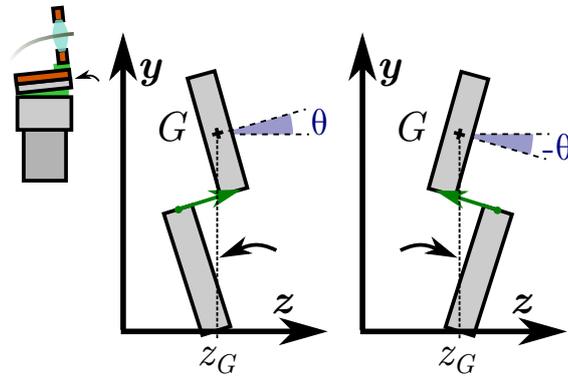


FIGURE D.36 – Deux positions d'un pendule double élastique. La barre du bas représente le nano-positionneur inertiel et, celle du haut, le support de la lentille percée. Elles sont liées par l'actionneur piézoélectrique (en vert). G marque l'emplacement de la fibre usinée, la longueur de cavité est donnée par z_G . Pour ces deux positions, les longueurs de l'actionneur piézoélectrique sont opposées pour une même longueur de cavité.

Pour pallier le problème de phase non minimale, il faut limiter les degrés de liberté du système. En rigidifiant le dispositif, il faut restreindre au maximum les vibrations à l'axe de déplacement de l'actionneur piézoélectrique.

APPENDIX E : PROCÉDURE D'ALIGNEMENT

Pour pouvoir comparer la photoluminescence de l'échantillon en cavité à celle en espace libre, il faut que l'excitation soit comparable dans les deux cas. Pour ce faire, l'échantillon est excité par l'arrière et n'est pas déplacé lorsque la cavité est refermée. Ainsi, seule la fibre est translatée pour mettre l'échantillon en cavité (selon z). Partant de ce constat, deux configurations sont possibles :

1. L'échantillon est gardé fixe et la fibre peut être déplacée dans les 3 directions de l'espace. Cette configuration a été exploitée dans la version antérieure de ce dispositif [40].
2. La fibre ne peut être translatée que selon une seule direction tandis que l'échantillon est déplaçable selon les directions orthogonales (x et y). Cette configuration a l'avantage de réduire la hauteur des piles supportant la fibre et l'échantillon ce qui diminue a priori l'amplitude des vibrations de la cavité. Il s'agit de celle adoptée dans cette thèse.

Le premier cas présente une grande flexibilité mais l'alignement est propre à un CNT : l'excitation et la collection arrières doivent être adaptés à chaque émetteur étudié. Le second est plus robuste car la cavité se referme toujours au même endroit par rapport à la table optique. De cette façon, il est possible d'étudier plusieurs CNT à la chaîne en décalant simplement l'échantillon. Cependant, le chemin optique est imposé par la position de la cavité et cela peut entraîner des aberrations et complexifier l'alignement.

Pour résumer, le système est décrit par les positions suivantes :

- La distance entre l'échantillon et la lentille percée est ajustable et définit l'axe (z). Si la lentille percée est à distance focale de l'échantillon (1,8 mm de distance de travail), les CNT sont observés en espace libre. Si la fibre usinée est proche du contact avec l'échantillon (0,5 à 1 mm entre la lentille et l'échantillon), les CNT sont observés en cavité.
- L'échantillon peut être translaté dans les deux directions orthogonales x et y . Un CNT sur l'échantillon est identifié par les coordonnées (x, y) prenant pour origine l'emplacement où se referme la cavité. Un CNT en $(x = 0, y = 0)$ pourra être observé en espace libre puis en cavité par une simple translation de la lentille percée (selon z).
- L'excitation et la collection avant sont déplacées conjointement sur l'échantillon grâce au miroir contrôlé décrit dans l'annexe A.2. Cela permet d'obtenir un

balayage de la photoluminescence de l'échantillon. Un CNT observé en espace libre est associé à des coordonnées (X, Y) dont l'origine correspond à la position de l'excitation/collection « avant » à mi-course du miroir contrôlé. Pour un alignement idéal, les origines des deux systèmes de coordonnées (x, y) et (X, Y) sont confondues.

E.1 Alignement des faisceaux

Pour pouvoir mettre un CNT en cavité, il faut repérer où la cavité va se refermer sur l'échantillon. Comme l'excitation arrière ne dépend ni de la position de l'échantillon ni de celle du miroir contrôlé, elle permet de garder en mémoire la position de la cavité. Puisque l'excitation est en dehors de la bande de réflexion des miroirs de Bragg, une partie de son intensité est transmise à travers la cavité via la fibre usinée. Ainsi, pour mieux résoudre l'emplacement de la cavité, le couplage de l'excitation arrière dans la fibre est optimisé lorsque le micro-miroir est quasiment au contact. Une fois alignée, l'excitation arrière définit l'axe optique du montage. L'excitation et la collection « avant » sont donc alignées pour passer par cet axe : la position à mi-course du miroir contrôlé doit correspondre à l'emplacement de la cavité. En pratique ce n'est jamais tout à fait le cas, la cavité est repérée par les coordonnées (X_C, Y_C) .

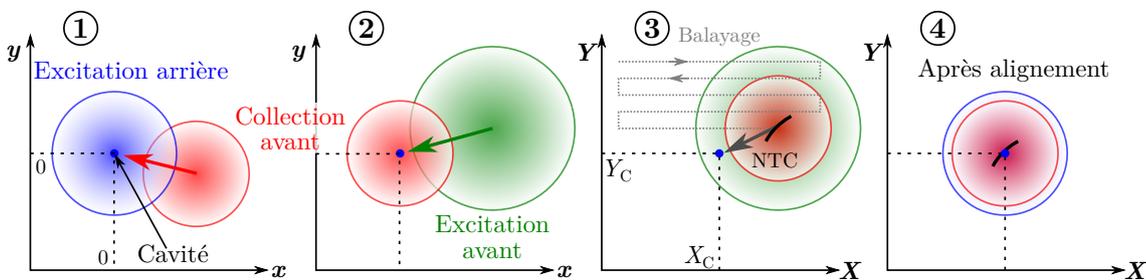


FIGURE E.1 – Schéma des différentes étapes nécessaires pour positionner un CNT à l'endroit où se referme la cavité et l'étudier dans des conditions d'excitation similaires en espace libre et en cavité.

Le fonctionnement de routine du dispositif est schématisé figure E.1 et se résume comme suit :

- La collection avant est alignée sur l'excitation arrière (1).
- L'excitation avant est alignée sur la collection avant (2).
- L'échantillon est placé **en espace libre sous excitation avant** et balayé grâce au miroir contrôlé pour **trouver un émetteur intéressant** (intense, stable et de grand facteur de qualité). Une carte en coordonnées (X, Y) est obtenue.

- **L'émetteur est amené là où se referme la cavité (3).** Le déplacement est effectué de proche en proche : l'échantillon est translaté de quelques μm tout en suivant l'émetteur à l'aide du miroir contrôlé pour l'amener en (X_C, Y_C) .
- La photoluminescence de **l'émetteur est étudiée sous excitation arrière** pour ne pas avoir à changer d'excitation une fois en cavité (4).
- **La cavité est refermée sur l'émetteur** et sa photoluminescence est étudiée avec les méthodes présentées partie 5.2.
- Ponctuellement, un retour en espace libre est nécessaire pour contrôler si l'émetteur n'a pas subi de changement.

Pour arriver à une bonne reproductibilité, certaines difficultés d'alignement ont dû être résolues. Les principales sont abordées dans les parties suivantes.

E.2 Transmission de l'excitation arrière

Une fois l'axe optique défini par la cavité, la collection et l'excitation « avant » doivent être superposées à l'excitation « arrière ». Cependant, dans le dispositif initial, l'intensité de l'excitation « arrière » transmise à travers l'enceinte du cryostat était trop faible pour mener à bien l'alignement. Comme schématisé à gauche de la figure E.2, ce phénomène est dû au trou dans la lentille percée : les collections de la lentille percée et de celle placée à l'arrière¹ de l'échantillon ne se recouvrent quasiment pas.

La distance de travail de la lentille percée est de 1,8 mm et le trou a un diamètre de 330 μm ce qui cache une ouverture numérique de 0,09. Or, la réfraction induite par l'échantillon ($n \approx 1,45$) fait passer cette ouverture morte à 0,13. Sachant que la lentille arrière a une ouverture numérique de 0,15, seulement une très faible fraction de intensité d'excitation est transmise à travers le cryostat.

Pour évaluer le problème, l'échantillon a été remplacé par un substrat comportant des marqueurs en argent (déjà mentionné dans la partie 1.2.2.1). L'excitation « avant » est focalisée sur ces marqueurs et le substrat est balayé à l'aide du miroir contrôlé. Les intensités réfléchi et transmise sont mesurées à l'aide d'une photodiode et tracées figure E.3. Lorsque la tache de focalisation passe sur les marqueurs l'intensité réfléchi doit augmenter et celle transmise doit diminuer. Cet effet est bien visible en réflexion mais il reste extrêmement ténu en transmission (Transmission 1).

En s'inspirant des lentilles à immersion solide, une lentille de correction² a été accolée à la face arrière de l'échantillon pour augmenter la transmission (voir à droite de la figure E.2). Cette lentille a été choisie pour que le point focal de l'excitation corresponde au centre de courbure de la lentille. Plus précisément, le rayon de courbure

1. Lentille asphérique 354120C amsTechnologies.

2. Lentille plan-convexe 67-457 Edmund Optics.

E.2. TRANSMISSION DE L'EXCITATION ARRIÈRE

de la lentille est de 7,75 mm ce qui correspond approximativement à la somme de son épaisseur de 1,6 mm avec celle de 6,35 mm du substrat de l'échantillon ($1,6 + 6,35 = 7,95$ mm). De cette façon, la réfraction due à la face arrière de l'échantillon est bien compensée. L'expérience de transmission a été réitérée dans ces conditions et les marqueurs sont, cette fois, bien visibles (Transmission 2). Cette lentille a aussi l'avantage d'augmenter la collection arrière du mode de cavité (voir annexe C.3.1).

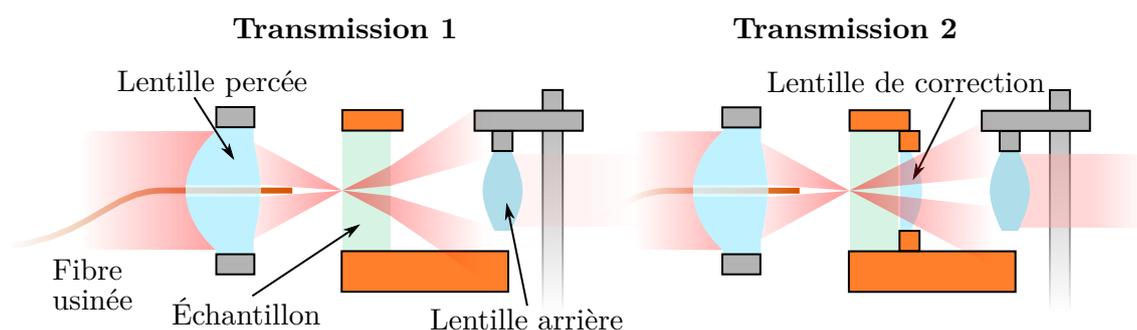


FIGURE E.2 – **Transmission 1** : Le trou dans la lentille percée couvre une grande partie de l'ouverture numérique de la lentille arrière. L'excitation avant n'est quasiment pas transmise à travers le dispositif. **Transmission 2** : L'ajout d'une lentille de correction permet de s'affranchir de la réfraction due à la face arrière de l'échantillon. Cela augmente significativement la transmission de l'excitation avant.

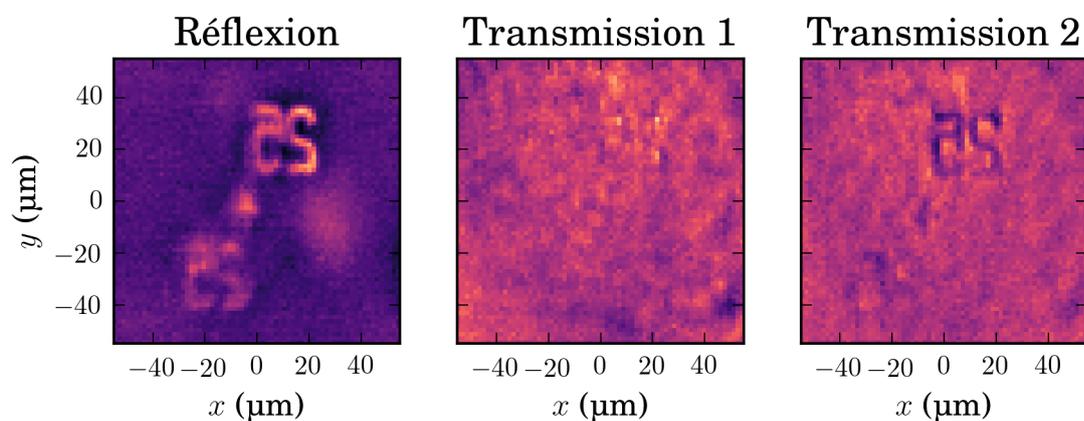


FIGURE E.3 – Un substrat avec marqueurs en argent est balayé par l'excitation avant grâce au miroir contrôlé. Les intensités réfléchie et transmise sont tracées en échelle de couleur. La carte **Transmission 1** correspond au dispositif initial tandis que la **Transmission 2** à l'ajout de la lentille de correction.

Une fois une partie de l'excitation arrière transmise à travers le dispositif, il est possible d'aligner la collection avant en maximisant l'intensité d'excitation arrière sur le spectromètre. C'est ce réglage qui définit l'origine des balayages réalisés avec le

miroir contrôlé (voir figure E.4). L'excitation avant est ensuite alignée en maximisant l'intensité mesurée au spectromètre de sa réflexion sur l'échantillon.

E.3 Aberrations sphériques et chromatiques

Forcer l'axe optique du montage à passer par l'emplacement ou se referme la cavité n'est pas idéal pour satisfaire les conditions de Gauss. En effet, si la fibre usinée ou si le déplacement du nano-positionneur ne sont pas parfaitement parallèles à l'axe de symétrie de la lentille, cette dernière sera inclinée par rapport à l'axe optique comme schématisé figure E.4 (dans le cas du nano-positionneur).

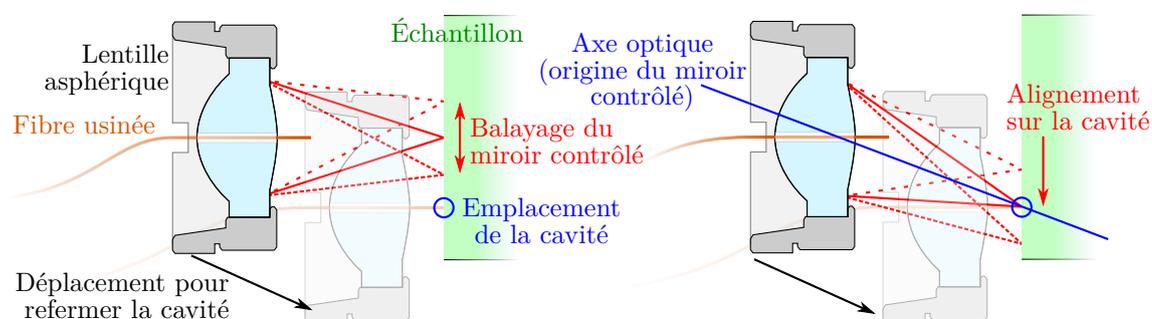


FIGURE E.4 – Schéma illustrant l'écart possible entre l'axe optique imposé par la cavité et l'axe de symétrie de la lentille. Ce phénomène induit des aberrations sphérique et diminue la collection si les éléments du cryostat ne sont pas alignés à moins de 5° près. L'inclinaison du déplacement du nano-positionneur n'est pas à l'échelle.

Même si la lentille percée est asphérique, ce phénomène doit être minimisé car il induit des aberrations. Pour cela, les éléments dans l'enceinte du cryostat doivent être fixés avec précision.

L'aire de l'échantillon balayée par le miroir contrôlé sans constater de diminution de la collection est d'environ $160 \times 160 \mu\text{m}^2$. Pour que la cavité se referme dans cette zone, le nano-positionneur ne doit pas dévier de plus de $80 \mu\text{m}$ sur 1 mm de course soit 5°.

Pour atteindre cette précision, de la lumière est injectée dans la fibre optique de façon à ce qu'elle sorte du micro-miroir. Cela permet d'orienter correctement la lentille percée et de régler la position de la lentille arrière après avoir fermé la cavité.

La lentille arrière est fixe et est réglée à la main, l'alignement et le réglage du point focal est donc délicat et reste approximatif. Pour compenser une mauvaise focalisation, la divergence de l'excitation arrière est ajustée via la collimation en sortie de fibre optique et celle de la collection arrière via un télescope. Plus généralement, les imperfections de focalisation sont inhérentes au dispositif à cause de la grande différence de longueur d'onde entre la photoluminescence des CNT et l'excitation. En

effet, aucune lentille dans l'enceinte du cryostat n'est achromatique pour minimiser l'encombrement ou pour éviter l'éclatement des doublets lors de la descente en température ou lors d'un perçage.

Entre l'excitation à 856 nm et la photoluminescence à 1310 nm, la focale de 3,1 mm de la lentille percée varie de 30 μm . Considérant le système parfaitement collimaté pour 1310 nm et un faisceau d'excitation de 1,5 mm de large, la tache d'excitation a un rayon de 15 μm . Son intensité est 1200 fois plus faible qu'un cas focalisé.

Puisque l'excitation avant n'est utile que lors de la recherche d'un émetteur, l'ajustement de la focale de la lentille percée est toujours réalisé au profit de la collection (sur un CNT en excitation arrière).

Cet effet chromatique a aussi lieu entre l'excitation et la collection arrière (collection en cavité). Toutefois, la divergence de la collection est systématiquement ajustée à l'aide du système afocal mentionné précédemment lors des tests de transmission de la cavité (voir annexe C.3.1). Quant à celle de l'excitation, elle est optimisée via la collimation du faisceau en sortie de fibre.

Le cumul des aberrations sphériques et chromatiques complexifie l'utilisation du dispositif. C'est pourquoi, le protocole d'alignement est toujours répété plusieurs fois pour converger vers un réglage robuste.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] KC Kao and George A Hockham. Dielectric-fibre surface waveguides for optical frequencies. In *Proceedings of the Institution of Electrical Engineers*, volume 113, pages 1151–1158. IET, 1966. 2
- [2] Albert Einstein. The photoelectric effect. *Ann. Phys*, 17(132) :4, 1905. 2
- [3] Gilbert N Lewis. The conservation of photons. *Nature*, 118(2981) :874, 1926. 2
- [4] Stephen Wiesner. Conjugate coding. *ACM Sigact News*, 15(1) :78–88, 1983. 2
- [5] Artur K Ekert. Quantum cryptography based on bell’s theorem. *Physical Review Letters*, 67(6) :661, 1991. 2
- [6] Alexios Beveratos, Rosa Brouri, Thierry Gacoin, André Villing, Jean-Philippe Poizat, and Philippe Grangier. Single photon quantum cryptography. *Physical Review Letters*, 89(18) :187901, 2002. 2
- [7] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. [Photon Antibunching in Resonance Fluorescence](#). *Physical Review Letters*, 39(11) :691–695, September 1977. 3
- [8] Philippe Grangier, Gerard Roger, and Alain Aspect. Experimental evidence for a photon anticorrelation effect on a beam splitter : a new light on single-photon interferences. *EPL (Europhysics Letters)*, 1(4) :173, 1986. 3
- [9] Matthew D Eisaman, Jingyun Fan, Alan Migdall, and Sergey V Polyakov. Invited review article : Single-photon sources and detectors. *Review of scientific instruments*, 82(7) :071101, 2011. 3, 41
- [10] Sumio Iijima. [Helical microtubules of graphitic carbon](#). *Nature*, 354(6348) :56, November 1991. 3, 8, 10, 24
- [11] M.S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, and R. Saito. [Physics of carbon nanotubes](#). *Carbon*, 33(7) :883–891, 1995. 3
- [12] MMJ Treacy, TW Ebbesen, and JM Gibson. Exceptionally high young’s modulus observed for individual carbon nanotubes. *nature*, 381(6584) :678, 1996. 3
- [13] M. J. O’Connell, S. M. Bachilo, Chad B Huffman, and R Bruce Weisman. [Band Gap Fluorescence from Individual Single-Walled Carbon Nanotubes](#). *Science*, 297(5581) :593–596, 2002. 3, 9

-
- [14] Jeffrey A Fagan, Constantine Y Khripin, Carlos A Silvera Batista, Jeffrey R Simpson, Erik H H  roz, Angela R Hight Walker, and Ming Zheng. Isolation of specific small-diameter single-wall carbon nanotube species via aqueous two-phase extraction. *Advanced Materials*, 26(18) :2800–2804, 2014. 3, 26
- [15] Navaneetha K Subbaiyan, Sofie Cambr  , A Nicholas G Parra-Vasquez, Erik H H  roz, Stephen K Doorn, and Juan G Duque. Role of surfactants and salt in aqueous two-phase separation of carbon nanotubes toward simple chirality isolation. *Acs Nano*, 8(2) :1619–1628, 2014. 3, 26, 27, 43, 45
- [16] Adrian Nish, Jeong-Yuan Hwang, James Doig, and Robin J. Nicholas. [Highly selective dispersion of single-walled carbon nanotubes using aromatic polymers.](#) *Nature Nanotechnology*, 2(10) :640–646, 2007. 3, 25
- [17] L. Orcin-Chaix, G. Tripp  -Allard, C. Voisin, H. Okuno, V. Derycke, J.-S. Lauret, and S. Campidelli. [Single-walled carbon nanotube/polystyrene core–shell hybrids: Synthesis and photoluminescence properties.](#) *Journal of Materials Chemistry C*, 6(17) :4786–4792, 2018. 3
- [18] Svetlana Khasminskaya, Felix Pyatkov, Karolina S  lowik, Simone Ferrari, Oliver Kahl, Vadim Kovalyuk, Patrik Rath, Andreas Vetter, Frank Hennrich, Manfred M. Kappes, G. Gol’tsman, A. Korneev, Carsten Rockstuhl, Ralph Krupke, and Wolfram H. P. Pernice. [Fully integrated quantum photonic circuit with an electrically driven light source.](#) *Nature Photonics*, 10(11) :727–732, November 2016. 3, 92, 202, 204
- [19] Felix Pyatkov, Valentin F  tterling, Svetlana Khasminskaya, Benjamin S. Flavel, Frank Hennrich, Manfred M. Kappes, Ralph Krupke, and Wolfram H. P. Pernice. [Cavity-enhanced light emission from electrically driven carbon nanotubes.](#) *Nature Photonics*, 10 :420, April 2016. 3, 91, 92, 202, 204
- [20] Alexander H  gele, Christophe Galland, Martin Winger, and Atac Imamolu. [Photon antibunching in the photoluminescence spectra of a single carbon nanotube.](#) *Physical Review Letters*, 100(21) :217401, 2008. 3, 4, 43, 44, 47, 60, 202
- [21] Takumi Endo, Junko Ishi-Hayase, and Hideyuki Maki. [Photon antibunching in single-walled carbon nanotubes at telecommunication wavelengths and room temperature.](#) *Applied Physics Letters*, 106(11) :113106, 2015. 3, 43, 44, 45, 50
- [22] Xuedan Ma, Nicolai F Hartmann, Jon K S Baldwin, Stephen K Doorn, and Han Htoon. [Room-temperature single-photon generation from solitary dopants of carbon nanotubes.](#) *Nature Nanotechnology*, 10(8) :671–675, 2015. 3, 43, 44, 48

- [23] J. Maultzsch, R. Pomraenke, S. Reich, E. Chang, D. Prezzi, A. Ruini, E. Molinari, M. S. Strano, C. Thomsen, and C. Lienau. [Exciton binding energies in carbon nanotubes from two-photon photoluminescence](#). *Physical Review B*, 72(24) :241402, December 2005. 3, 21
- [24] Feng Wang, Gordana Dukovic, Louis E. Brus, and Tony F. Heinz. [The optical resonances in carbon nanotubes arise from excitons](#). *Science (New York, N.Y.)*, 308(5723) :838–840, 2005. 3
- [25] Y. Miyauchi, R. Saito, K. Sato, Y. Ohno, S. Iwasaki, T. Mizutani, J. Jiang, and S. Maruyama. [Dependence of exciton transition energy of single-walled carbon nanotubes on surrounding dielectric materials](#). *Chemical Physics Letters*, 442(4-6) :394–399, 2007. 4, 20, 47, 202
- [26] Daohua Song, Feng Wang, Gordana Dukovic, Ming Zheng, E. D. Semke, Louis E. Brus, and Tony F. Heinz. [Measurement of the optical Stark effect in semiconducting carbon nanotubes](#). *Applied Physics A*, 96(2) :283–287, August 2009. 4
- [27] Christophe Galland, Alexander Högele, Hakan E. Türeci, and Ataç Imamoğlu. [Non-Markovian Decoherence of Localized Nanotube Excitons by Acoustic Phonons](#). *Physical Review Letters*, 101(6) :067402, 2008. 4, 47, 54, 202, 211, 212
- [28] F. Vialla, Y. Chassagneux, R. Ferreira, C. Roquelet, C. Diederichs, G. Cassabois, Ph Roussignol, J. S. Lauret, and C. Voisin. [Unifying the low-temperature photoluminescence spectra of carbon nanotubes: The role of acoustic phonon confinement](#). *Physical Review Letters*, 113(5) :057402, 2014. 4, 47, 49, 54, 75, 202, 210, 213
- [29] Matthias S. Hofmann, Jonathan Noé, Alexander Kneer, Jared J. Crochet, and Alexander Högele. [Ubiquity of Exciton Localization in Cryogenic Carbon Nanotubes](#). *Nano Letters*, 16(5) :2958–2962, 2016. 4, 48, 49, 50
- [30] Feng Wang, Gordana Dukovic, Ernst Knoesel, Louis E. Brus, and Tony F. Heinz. [Observation of rapid Auger recombination in optically excited semiconducting carbon nanotubes](#). *Physical Review B*, 70(24) :241403, December 2004. 4
- [31] Nicolai F. Hartmann, Kirill A. Velizhanin, Erik H. Haroz, Mijin Kim, Xuedan Ma, Yuhuang Wang, Han Htoon, and Stephen K. Doorn. [Photoluminescence Dynamics of Aryl sp³ Defect States in Single-Walled Carbon Nanotubes](#). *ACS Nano*, 10(9) :8355–8365, 2016. 4, 21, 75, 196, 201
- [32] Xiaowei He, Nicolai F. Hartmann, Xuedan Ma, Younghee Kim, Rachelle Ihly, Jeffrey L. Blackburn, Weilu Gao, Junichiro Kono, Yohei Yomogida, Atsushi Hirano, Takeshi Tanaka, Hiromichi Kataura, Han Htoon, and Stephen K. Doorn.

- Tunable room-temperature single-photon emission at telecom wavelengths from sp³ defects in carbon nanotubes. *Nature Photonics*, 11(9) :577, 2017. 4, 32, 33, 44, 45, 202
- [33] Edward Mills Purcell. Spontaneous emission probabilities at radio frequencies. *Physical Review*, 69 :681, 1946. 4, 63, 66
- [34] Alexia Auffèves, Dario Gerace, J-M Gérard, M França Santos, LC Andreani, and J-P Poizat. Controlling the dynamics of a coupled atom-cavity system by pure dephasing. *Physical Review B*, 81(24) :245419, 2010. 4, 75, 76, 77, 112
- [35] Yue Luo, Ehsaneh D. Ahmadi, Kamran Shayan, Yichen Ma, Kevin S. Mistry, Changjian Zhang, James Hone, Jeffrey L. Blackburn, and Stefan Strauf. Purcell-enhanced quantum yield from carbon nanotube excitons coupled to plasmonic nanocavities. *Nature Communications*, 8(1), 2017. 4, 37, 59, 93, 94, 95, 96, 141, 202, 204
- [36] D Hunger, T Steinmetz, Y Colombe, C Deutsch, T W Hänsch, and J Reichel. A fiber Fabry–Perot cavity with high finesse. *New Journal of Physics*, 12(6) :065038, June 2010. 4, 71, 97, 105, 106, 125, 126, 129, 203
- [37] Adrien Jeantet, Yannick Chassagneux, Christophe Raynaud, Philippe Roussignol, Jean-Sébastien Lauret, Benjamin Besga, Jérôme Estève, Jakob Reichel, and Christophe Voisin. Widely tunable single-photon source from a carbon nanotube in the Purcell regime. *Physical Review Letters*, 116(24) :247402, 2016. 4, 21, 94, 97, 182, 183, 204
- [38] Alexia Auffèves, Jean-Michel Gérard, and Jean-Philippe Poizat. Pure emitter dephasing : A resource for advanced solid-state single-photon sources. *Physical Review A*, 79(5) :053838, 2009. 5, 74, 75
- [39] Yannick Chassagneux, Adrien Jeantet, Théo Claude, and Christophe Voisin. Effect of phonon-bath dimensionality on the spectral tuning of single-photon emitters in the Purcell regime. *Physical Review B*, 97(20) :205124, May 2018. 5, 193, 194, 201, 204, 217, 220
- [40] Adrien Jeantet. *Cavity Quantum Electrodynamics with Carbon Nanotubes*. PhD thesis, Université Sorbonne Paris Cité, Paris, March 2017. 5, 75, 106, 107, 128, 174, 175, 181, 271
- [41] Christophe Raynaud, Théo Claude, Antoine Borel, Mohamed-Raouf Amara, Arko Graf, Jana Zaumseil, Jean-Sébastien Lauret, Yannick Chassagneux, and Christophe Voisin. Super-localization of excitons in carbon nanotubes at cryogenic temperature. *arXiv preprint arXiv :1907.07530*, 2019. 5, 48, 49, 50, 51, 53, 54, 55, 56, 58, 202

BIBLIOGRAPHIE

- [42] Marc Monthieux and Vladimir L. Kuznetsov. [Who should be given the credit for the discovery of carbon nanotubes?](#) *Carbon*, 44(9) :1621–1623, August 2006. 8
- [43] LV Radushkevich and VM Lukyanovich. O strukture ugleroda, obrazujucesja pri termiceskom razlozenii okisi ugleroda na zeleznom kontakte. *Zurn Fisic Chim*, 26(1) :88–95, 1952. 8, 10
- [44] Krzysztof Koziol, Juan Vilatela, Anna Moisala, Marcelo Motta, Philip Cunniff, Michael Sennett, and Alan Windle. High-performance carbon nanotube fiber. *Science*, 318(5858) :1892–1895, 2007. 8
- [45] Yunxiang Bai, Rufan Zhang, Xuan Ye, Zhenxing Zhu, Huanhuan Xie, Boyuan Shen, Dali Cai, Bofei Liu, Chenxi Zhang, Zhao Jia, et al. Carbon nanotube bundles with tensile strength over 80 gpa. *Nature Nanotechnology*, 13(7) :589, 2018. 8
- [46] Mehmet Kanik, Sirma Orguc, Georgios Varnavides, Jinwoo Kim, Thomas Benavides, Dani Gonzalez, Timothy Akintilo, C Cem Tasan, Anantha P Chandrakasan, Yoel Fink, et al. Strain-programmable fiber-based artificial muscle. *Science*, 365(6449) :145–150, 2019. 8
- [47] R. Martel, T. Schmidt, H. R. Shea, T. Hertel, and Ph. Avouris. [Single- and multi-wall carbon nanotube field-effect transistors.](#) *Applied Physics Letters*, 73(17) :2447–2449, October 1998. 8
- [48] Gerald J Brady, Austin J Way, Nathaniel S Safron, Harold T Evensen, Padma Gopalan, and Michael S Arnold. Quasi-ballistic carbon nanotube array transistors with current density exceeding si and gaas. *Science advances*, 2(9) :e1601240, 2016. 8
- [49] Max M Shulaker, Gage Hills, Rebecca S Park, Roger T Howe, Krishna Saraswat, H-S Philip Wong, and Subhasish Mitra. Three-dimensional integration of nanotechnologies for computing and data storage on a single chip. *Nature*, 547(7661) :74, 2017. 8
- [50] Ali Eatemadi, Hadis Daraee, Hamzeh Karimkhanloo, Mohammad Kouhi, Nosratollah Zarghami, Abolfazl Akbarzadeh, Mozhgan Abasi, Younes Hanifehpour, and Sang Woo Joo. Carbon nanotubes : properties, synthesis, purification, and medical applications. *Nanoscale research letters*, 9(1) :393, 2014. 8, 25
- [51] Sadaf Usmani, Emily Rose Aurand, Manuela Medelin, Alessandra Fabbro, Denis Scaini, Jummi Laishram, Federica B Rosselli, Alessio Ansuini, Davide Zoccolan, Manuela Scarselli, et al. 3d meshes of carbon nanotubes guide functional reconnection of segregated spinal explants. *Science advances*, 2(7) :e1600087, 2016. 8

-
- [52] Zhuangchun Wu, Zhihong Chen, Xu Du, Jonathan M Logan, Jennifer Sippel, Maria Nikolou, Katalin Kamaras, John R Reynolds, David B Tanner, Arthur F Hebard, et al. Transparent, conductive carbon nanotube films. *Science*, 305(5688) :1273–1276, 2004. 9
- [53] Zu-Po Yang, Lijie Ci, James A Bur, Shawn-Yu Lin, and Pulickel M Ajayan. Experimental observation of an extremely dark material made by a low-density nanotube array. *Nano Letters*, 8(2) :446–451, 2008. 9
- [54] Xu A Zhang, Shangjie Yu, Beibei Xu, Min Li, Zhiwei Peng, Yongxin Wang, Shunliu Deng, Xiaojian Wu, Zupeng Wu, Min Ouyang, et al. Dynamic gating of infrared radiation in a textile. *Science*, 363(6427) :619–623, 2019. 9
- [55] DS Bethune, Ch H Kiang, MS De Vries, G Gorman, R Savoy, J Vazquez, and R Beyers. Cobalt-catalysed growth of carbon nanotubes with single-atomic-layer walls. *Nature*, 363(6430) :605–607, 1993. 9
- [56] Sumio Iijima and Toshinari Ichihashi. Single-shell carbon nanotubes of 1-nm diameter. *Nature*, 363(6430) :603–605, June 1993. 9
- [57] Dmitry I Levshov, Romain Parret, Huy-Nam Tran, Thierry Michel, Thi Thanh Cao, Raul Arenal, Valentin N Popov, Sergei B Rochal, Jean-Louis Sauvajol, Ahmed-Azmi Zahab, et al. Photoluminescence from an individual double-walled carbon nanotube. *Physical Review B*, 96(19) :195410, 2017. 9
- [58] Riichiro Saito, Gene Dresselhaus, and Mildred S Dresselhaus. *Physical Properties of Carbon Nanotubes*. World Scientific, 1998. 10, 11
- [59] Morgane Gandil. *Propriétés magnéto-optiques de nanotubes de carbone individuels suspendus*. PhD thesis, Université de Bordeaux, Bordeaux, 2017. 12, 22, 204
- [60] Christophe Raynaud. *Spectroscopie d'absorption et d'émission des excitons dans les nanotubes de carbone*. PhD thesis, Université Paris Diderot - Paris VII, Paris, November 2018. 13, 15, 22, 37, 48, 49, 60, 196, 210
- [61] A. H. Castro Neto, F. Guinea, N. M. R. Peres, K. S. Novoselov, and A. K. Geim. The electronic properties of graphene. *Reviews of Modern Physics*, 81(1) :109–162, January 2009. 14
- [62] R. Saito, M. Fujita, G. Dresselhaus, and M. S Dresselhaus. Electronic structure of chiral graphene tubules. *Applied Physics Letters*, 60(18) :2204–2206, May 1992. 15
- [63] Fabien Vialla. *Interaction entre les nanotubes de carbone et leur environnement physico-chimique : vers un contrôle des propriétés optiques*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI, Paris, 2014. 16, 20, 49, 210, 211

- [64] J. W. Mintmire and C. T. White. [Universal Density of States for Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 81(12) :2506–2509, September 1998. 16
- [65] Stephanie Reich, Christian Thomsen, and Janina Maultzsch. *Carbon Nanotubes : Basic Concepts and Physical Properties*. John Wiley & Sons, 2008. 17
- [66] Peter Yu and Manuel Cardona. *Fundamentals of Semiconductors : Physics and Materials Properties. Graduate Texts in Physics*. Springer Berlin, 2010. 17
- [67] A. Grüneis, R. Saito, Ge. G. Samsonidze, T. Kimura, M. A. Pimenta, A. Jorio, A. G. Souza Filho, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus. [Inhomogeneous optical absorption around the \$K\$ point in graphite and carbon nanotubes](#). *Physical Review B*, 67(16) :165402, April 2003. 17
- [68] Ermin Malić, Matthias Hirtschulz, Frank Milde, Andreas Knorr, and Stephanie Reich. [Analytical approach to optical absorption in carbon nanotubes](#). *Physical Review B*, 74(19) :195431, 2006. 17
- [69] J. Jiang, R. Saito, A. Grüneis, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus. Optical absorption matrix elements in single-wall carbon nanotubes. *Carbon*, 42(15) :3169–3176, 2004. 18
- [70] Kaihui Liu, Jack Deslippe, Fajun Xiao, Rodrigo B Capaz, Xiaoping Hong, Shaul Aloni, Alex Zettl, Wenlong Wang, Xuedong Bai, Steven G Louie, Enge Wang, and Feng Wang. [An atlas of carbon nanotube optical transitions](#). *Nature Nanotechnology*, 7(5) :325–9, 2012. 19, 209
- [71] C. L. Kane and E. J. Mele. [Electron Interactions and Scaling Relations for Optical Excitations in Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 93(19) :197402, November 2004. 20
- [72] Ying-Zhong Ma, Leonas Valkunas, Sergei M. Bachilo, and Graham R. Fleming. [Exciton Binding Energy in Semiconducting Single-Walled Carbon Nanotubes](#). *The Journal of Physical Chemistry B*, 109(33) :15671–15674, August 2005. 20
- [73] Claus F Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer Science & Business Media, 2012. 20
- [74] D. T. Nguyen, C. Voisin, Ph. Roussignol, C. Roquelet, J. S. Lauret, and G. Cassabois. [Elastic Exciton-Exciton Scattering in Photoexcited Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 107(12) :127401, September 2011. 20
- [75] Tsuneya Ando. [Excitons in carbon nanotubes](#). *JPSJ*, 66(4) :1066–1073, 1997. 20

-
- [76] Jack Deslippe, Mario Dipoppa, David Prendergast, Marcus VO Moutinho, Rodrigo B Capaz, and Steven G Louie. Electron- hole interaction in carbon nanotubes : Novel screening and exciton excitation spectra. *Nano Letters*, 9(4) :1330–1334, 2009. 20
- [77] Sofie Cambré, Silvia M. Santos, Wim Wenseleers, Ahmad R T Nugraha, Riichiro Saito, Laurent Cognet, and Brahim Lounis. [Luminescence properties of individual empty and water-filled single-walled carbon nanotubes](#). *ACS Nano*, 6(3) :2649–2655, 2012. 20
- [78] Benjamin Langlois. *Propriétés optiques hors-équilibre des nanotubes de carbone nus ou fonctionnalisés*. PhD thesis, Ecole normale supérieure, Paris, 2014. 20
- [79] Xuedan Ma, Lyudmyla Adamska, Hisato Yamaguchi, Sibel Ebru Yalcin, Sergei Tretiak, Stephen K. Doorn, and Han Htoon. [Electronic structure and chemical nature of oxygen dopant states in carbon nanotubes](#). *ACS Nano*, 8(10) :10782–10789, 2014. 20, 48
- [80] Ermin Malic and Andreas Knorr. *Graphene and Carbon Nanotubes : Ultrafast Optics and Relaxation Dynamics*. John Wiley & Sons, 2013. 21
- [81] Gordana Dukovic, Feng Wang, Daohua Song, Matthew Y. Sfeir, Tony F. Heinz, and Louis E. Brus. [Structural Dependence of Excitonic Optical Transitions and Band-Gap Energies in Carbon Nanotubes](#). *Nano Letters*, 5(11) :2314–2318, November 2005. 21
- [82] J-S. Lauret, C. Voisin, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, O. Jost, and L. Capes. [Ultrafast Carrier Dynamics in Single-Wall Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 90(5) :057404, February 2003. 21
- [83] Axel Hagen, Mathias Steiner, Markus B. Raschke, Christoph Lienau, Tobias Hertel, Huihong Qian, Alfred J. Meixner, and Achim Hartschuh. [Exponential Decay Lifetimes of Excitons in Individual Single-Walled Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 95(19) :197401, November 2005. 21
- [84] Matthias S Hofmann, Jan T Glückert, Jonathan Noé, Christian Bourjau, Raphael Dehmel, and Alexander Högele. [Bright, long-lived and coherent excitons in carbon nanotube quantum dots](#). *Nature Nanotechnology*, 8(7) :502–5, 2013. 21, 75, 199, 211
- [85] Flávio Plentz, Henrique B. Ribeiro, Ado Jorio, Michael S. Strano, and Marcos A. Pimenta. [Direct Experimental Evidence of Exciton-Phonon Bound States in Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 95(24) :247401, December 2005. 22

- [86] Ryusuke Matsunaga, Kazunari Matsuda, and Yoshihiko Kanemitsu. Origin of low-energy photoluminescence peaks in single carbon nanotubes : K -momentum dark excitons and triplet dark excitons. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 81(3) :1–4, 2010. 22
- [87] Christophe Voisin, Sébastien Berger, Stéphane Berciaud, Huguen Yan, Jean Sébastien Lauret, Guillaume Cassabois, Philippe Roussignol, James Hone, and Tony F. Heinz. [Excitonic signatures in the optical response of single-wall carbon nanotubes](#). *Physica Status Solidi (B) Basic Research*, 249(5) :900–906, 2012. 23
- [88] Avetik R Harutyunyan, Bhabendra K Pradhan, UJ Kim, Gugang Chen, and PC Eklund. Cvd synthesis of single wall carbon nanotubes under soft conditions. *Nano Letters*, 2(5) :525–530, 2002. 24
- [89] Cyrielle Roquelet. *Transfert d'énergie dans des composés nanotube de carbone/porphyrine*. PhD thesis, Université Paris Sud, Paris, 2012. 25
- [90] A Iaiia, L Marty, C Naud, V Bouchiat, A Loiseau, E Di Muccio, T Fournier, and AM Bonnot. Oriented growth of suspended single wall carbon nanotube by hot filament CVD. *Thin solid films*, 501(1-2) :221–223, 2006. 25
- [91] N. Izard, S. Kazaoui, K. Hata, T. Okazaki, T. Saito, S. Iijima, and N. Minami. [Semiconductor-enriched single wall carbon nanotube networks applied to field effect transistors](#). *Applied Physics Letters*, 92(24) :243112, 2008. 25
- [92] Hongliu Yang, Viktor Bezugly, Jens Kunstmann, Arianna Filoramo, and Gianuario Cuniberti. Diameter-selective dispersion of carbon nanotubes via polymers : A competition between adsorption and bundling. *ACS Nano*, 9(9) :9012–9019, 2015. 25
- [93] Michael S. Arnold, Alexander A. Green, James F. Hulvat, Samuel I. Stupp, and Mark C. Hersam. [Sorting carbon nanotubes by electronic structure using density differentiation](#). *Nature Nanotechnology*, 1(1) :60–65, October 2006. 26
- [94] Andreas Thess, Roland Lee, Pavel Nikolaev, Hongjie Dai, Pierre Petit, Jerome Robert, Chunhui Xu, Young Hee Lee, Seong Gon Kim, Andrew G. Rinzler, Daniel T. Colbert, Gustavo E. Scuseria, David Tománek, John E. Fischer, and Richard E. Smalley. [Crystalline Ropes of Metallic Carbon Nanotubes](#). *Science*, 273(5274) :483–487, July 1996. 26
- [95] Hiroaki Ozawa, Natsuko Ide, Tsuyohiko Fujigaya, Yasuro Niidome, and Naotoshi Nakashima. [One-pot Separation of Highly Enriched \(6,5\)-Single-walled Carbon Nanotubes Using a Fluorene-based Copolymer](#). *Chemistry Letters*, 40(3) :239–241, 2011. 26

- [96] Xiaowei He, Brendan J. Gifford, Nicolai F. Hartmann, Rachelle Ihly, Xuedan Ma, Svetlana V. Kilina, Yue Luo, Kamran Shayan, Stefan Strauf, Jeffrey L. Blackburn, Sergei Tretiak, Stephen K. Doorn, and Han Htoon. [Low-Temperature Single Carbon Nanotube Spectroscopy of sp³ Quantum Defects](#). *ACS Nano*, 11(11) :10785–10796, 2017. 27, 29, 48, 75, 202
- [97] Hong-Bin Luo, Peng Wang, Xiaojian Wu, Haoran Qu, Xiaoming Ren, and YuHuang Wang. A one-pot, large-scale synthesis of organic color center-tailored semiconducting carbon nanotubes. *ACS Nano*, 2019. 27, 28
- [98] William Walden-Newman, Ibrahim Sarpkaya, and Stefan Strauf. [Quantum light signatures and nanosecond spectral diffusion from cavity-embedded carbon nanotubes](#). *Nano Letters*, 12(4) :1934–1941, 2012. 29
- [99] Lucile Orcin-Chaix. *Synthèse et étude de systèmes cœur/coquille à base de nanotubes de carbone*. PhD thesis, Université Paris Sud, 2019. Thèse de doctorat dirigée par Jean-Sébastien Lauret et Stéphane Campidelli. 29, 32, 37, 45
- [100] G Margolin, V Protasenko, M Kuno, and E Barkai. Photon counting statistics for blinking CdSe-ZnS quantum dots : A Lévy walk process. *The Journal of Physical Chemistry B*, 110(38) :19053–19060, 2006. 32
- [101] Xiao-Liu Chu, Stephan Götzinger, and Vahid Sandoghdar. A single molecule as a high-fidelity photon gun for producing intensity-squeezed light. *Nature Photonics*, 11(1) :58, 2017. 32
- [102] Jonathan C. Noé, Manuel Nutz, Jonathan Reschauer, Nicolas Morell, Ioannis Tsioutsios, Antoine Reserbat-Plantey, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Adrian Bachtold, and Alexander Högele. [Environmental Electrometry with Luminescent Carbon Nanotubes](#). *Nano Letters*, 18(7) :4136–4140, July 2018. 36, 37, 202
- [103] Xuedan Ma, Oleksiy Roslyak, Feng Wang, Juan G. Duque, Andrei Piryatinski, Stephen K. Doorn, and Han Htoon. [Influence of exciton dimensionality on spectral diffusion of single-walled carbon nanotubes](#). *ACS Nano*, 8(10) :10613–10620, 2014. 36, 47, 75, 202
- [104] Adrien Jeantet, Yannick Chassagneux, Théo Claude, Jean Sebastien Lauret, and Christophe Voisin. [Interplay of spectral diffusion and phonon-broadening in single photo-emitters : The case of carbon nanotubes](#). *Nanoscale*, 10(2) :683–689, 2017. 37, 47, 202
- [105] Nan Ai, William Walden-Newman, Qiang Song, Sokratis Kalliakos, and Stefan Strauf. [Suppression of blinking and enhanced exciton emission from individual carbon nanotubes](#). *ACS Nano*, 5(4) :2664–2670, 2011. 37

- [106] Igor Aharonovich, Dirk Englund, and Milos Toth. [Solid-state single-photon emitters](#). *Nature Photonics*, 10(10) :631–641, 2016. [38](#)
- [107] J Huwer, RM Stevenson, J Skiba-Szymanska, MB Ward, AJ Shields, M Felle, I Farrer, David Alastair Ritchie, and Richard Vincent Penty. Quantum-dot-based telecommunication-wavelength quantum relay. *Physical Review Applied*, 8(2) :024007, 2017. [38](#)
- [108] Characteristics of a single-mode optical fibre and cable. *Transmission Media and Optical Systems Characteristics - ITU*, G(652), 2016. [38](#), [112](#)
- [109] Anaïs Dréau, Anna Tchebotareva, Aboubakr El Mahdaoui, Cristian Bonato, and Ronald Hanson. Quantum frequency conversion of single photons from a nitrogen-vacancy center in diamond to telecommunication wavelengths. *Physical Review Applied*, 9(6) :064031, 2018. [40](#)
- [110] Sebastian Zaske, Andreas Lenhard, Christian A Keßler, Jan Kettler, Christian Hepp, Carsten Arend, Roland Albrecht, Wolfgang-Michael Schulz, Michael Jetter, Peter Michler, et al. Visible-to-telecom quantum frequency conversion of light from a single quantum emitter. *Physical Review Letters*, 109(14) :147404, 2012. [40](#)
- [111] Benjamin Kambs, Jan Kettler, Matthias Bock, Jonas Nils Becker, Carsten Arend, Andreas Lenhard, Simone Luca Portalupi, Michael Jetter, Peter Michler, and Christoph Becher. Low-noise quantum frequency down-conversion of indistinguishable photons. *Optics express*, 24(19) :22250–22260, 2016. [40](#)
- [112] Niccolo Somaschi, Valerian Giesz, Lorenzo De Santis, JC Loredó, Marcelo P Almeida, Gaston Hornecker, Simone Luca Portalupi, Thomas Grange, Carlos Antón, Justin Demory, et al. Near-optimal single-photon sources in the solid state. *Nature Photonics*, 10(5) :340, 2016. [41](#)
- [113] MB Ward, OZ Karimov, DC Unitt, ZL Yuan, P See, DG Gevaux, AJ Shields, P Atkinson, and DA Ritchie. On-demand single-photon source for 1.3 μ m telecom fiber. *Applied Physics Letters*, 86(20) :201111, 2005. [41](#)
- [114] Toshiyuki Miyazawa, Kazuya Takemoto, Yoshiki Sakuma, Shinichi Hirose, Tatsuya Usuki, Naoki Yokoyama, Motomu Takatsu, and Yasuhiko Arakawa. Single-photon generation in the 1.55- μ m optical-fiber band from an inas/inp quantum dot. *Japanese Journal of Applied Physics*, 44(5L) :L620, 2005. [41](#)
- [115] Sofiane Haffouz, Katharina D Zeuner, Dan Dalacu, Philip J Poole, Jean Lapointe, Daniel Poitras, Khaled Mnaymneh, Xiaohua Wu, Martin Couillard, Marek Korkusinski, et al. Bright single inasp quantum dots at telecom wavelengths in position-controlled inp nanowires : the role of the photonic waveguide. *Nano Letters*, 18(5) :3047–3052, 2018. [41](#), [45](#)

-
- [116] T Müller, J Skiba-Szymanska, AB Krysa, J Huwer, M Felle, M Anderson, RM Stevenson, J Heffernan, David Alastair Ritchie, and AJ Shields. A quantum light-emitting diode for the standard telecom window around 1,550 nm. *Nature Communications*, 9(1) :862, 2018. [41](#)
- [117] KS Novoselov, A Mishchenko, A Carvalho, and AH Castro Neto. 2d materials and van der waals heterostructures. *Science*, 353(6298) :aac9439, 2016. [41](#)
- [118] Chitrleema Chakraborty, Laura Kinnischtzke, Kenneth M Goodfellow, Ryan Beams, and A Nick Vamivakas. Voltage-controlled quantum light from an atomically thin semiconductor. *Nature Nanotechnology*, 10(6) :507, 2015. [41](#)
- [119] Yu-Ming He, Genevieve Clark, John R Schaibley, Yu He, Ming-Cheng Chen, Yu-Jia Wei, Xing Ding, Qiang Zhang, Wang Yao, Xiaodong Xu, et al. Single quantum emitters in monolayer semiconductors. *Nature Nanotechnology*, 10(6) :497, 2015. [41](#)
- [120] M Koperski, K Nogajewski, A Arora, V Cherkez, P Mallet, J-Y Veullen, J Marcus, P Kossacki, and M Potemski. Single photon emitters in exfoliated wse 2 structures. *Nature Nanotechnology*, 10(6) :503, 2015. [41](#)
- [121] Ajit Srivastava, Meinrad Sidler, Adrien V Allain, Dominik S Lembke, Andras Kis, and A Imamoglu. Optically active quantum dots in monolayer wse 2. *Nature Nanotechnology*, 10(6) :491, 2015. [41](#)
- [122] Yue Luo, Na Liu, Xiangzhi Li, James C Hone, and Stefan Strauf. Single photon emission in wse2 up 160 k by quantum yield control. *2D Materials*, 6(3) :035017, 2019. [41](#)
- [123] Gabriele Grosso, Hyowon Moon, Benjamin Lienhard, Sajid Ali, Dmitri K Efetov, Marco M Furchi, Pablo Jarillo-Herrero, Michael J Ford, Igor Aharonovich, and Dirk Englund. Tunable and high-purity room temperature single-photon emission from atomic defects in hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, 8(1) :705, 2017. [41](#)
- [124] Andres Castellanos-Gomez. Black phosphorus : narrow gap, wide applications. *The journal of physical chemistry letters*, 6(21) :4280–4291, 2015. [42](#)
- [125] Jiajie Pei, Xin Gai, Jiong Yang, Xibin Wang, Zongfu Yu, Duk-Yong Choi, Barry Luther-Davies, and Yuerui Lu. Producing air-stable monolayers of phosphorene and their defect engineering. *Nature Communications*, 7 :10450, 2016. [42](#)
- [126] Renjing Xu, Jiong Yang, Ye Win Myint, Jiajie Pei, Han Yan, Fan Wang, and Yuerui Lu. Exciton brightening in monolayer phosphorene via dimensionality modification. *Advanced Materials*, 28(18) :3493–3498, 2016. [42](#)

- [127] Alexandre Favron, Etienne Gaufres, Frédéric Fossard, Anne-Laurence Phaneuf-L'Heureux, Nathalie YW Tang, Pierre L Lévesque, Annick Loiseau, Richard Leonelli, Sébastien Francoeur, and Richard Martel. Photooxidation and quantum confinement effects in exfoliated black phosphorus. *Nature materials*, 14(8) :826, 2015. [42](#)
- [128] Jeffrey J Peterson and Todd D Krauss. Fluorescence spectroscopy of single lead sulfide quantum dots. *Nano Letters*, 6(3) :510–514, 2006. [42](#), [43](#), [45](#)
- [129] Raoul E Correa, Eric A Dauler, Gautham Nair, Si H Pan, Danna Rosenberg, Andrew J Kerman, Richard J Molnar, Xiaolong Hu, Francesco Marsili, Vikas Anant, et al. Single photon counting from individual nanocrystals in the infrared. *Nano Letters*, 12(6) :2953–2958, 2012. [42](#), [43](#), [45](#)
- [130] Haipeng Lu, Gerard M Carroll, Nathan R Neale, and Matthew C Beard. Infrared quantum dots : Progress, challenges, and opportunities. *ACS Nano*, 13(2) :939–953, 2019. [42](#)
- [131] Yu Zhou, Ziyu Wang, Abdullah Rasmita, Sejeong Kim, Amanuel Berhane, Zoltán Bodrog, Giorgio Adamo, Adam Gali, Igor Aharonovich, and Wei-bo Gao. Room temperature solid-state quantum emitters in the telecom range. *Science advances*, 4(3) :eaar3580, 2018. [43](#), [45](#)
- [132] Junfeng Wang, Yu Zhou, Ziyu Wang, Abdullah Rasmita, Jianqun Yang, Xingji Li, Hans Jürgen Von Bardeleben, and Weibo Gao. Bright room temperature single photon source at telecom range in cubic silicon carbide. *Nature Communications*, 9(1) :4106, 2018. [43](#), [45](#)
- [133] Feng Wang, Yang Wu, Mark S. Hybertsen, and Tony F. Heinz. [Auger recombination of excitons in one-dimensional systems](#). *Physical Review B*, 73(24), 2006. [43](#)
- [134] Yuhei Miyauchi, Munechiyo Iwamura, Shinichiro Mouri, Tadashi Kawazoe, Motoichi Ohtsu, and Kazunari Matsuda. [Brightening of excitons in carbon nanotubes on dimensionality modification](#). *Nature Photonics*, 7(9) :715–719, 2013. [45](#), [204](#)
- [135] Yanmei Piao, Brendan Meany, Lyndsey R. Powell, Nicholas Valley, Hyejin Kwon, George C. Schatz, and YuHuang Wang. [Brightening of carbon nanotube photoluminescence through the incorporation of sp³ defects](#). *Nature Chemistry*, 5(10) :840–845, 2013. [45](#), [204](#)
- [136] Laurent Cognet, Dmitri A Tsyboulski, John-David R Rocha, Condell D Doyle, James M Tour, and R Bruce Weisman. [Stepwise quenching of exciton fluorescence in carbon nanotubes by single-molecule reactions](#). *Science (New York, N.Y.)*, 316(5830) :1465–8, June 2007. [47](#), [50](#)

-
- [137] Tobias Hertel, Sabine Himmelein, Thomas Ackermann, Dominik Stich, and Jared J. Crochet. [Diffusion Limited Photoluminescence Quantum Yields in 1-D Semiconductors](#) :. *ACS Nano*, 4(12) :7161–7168, 2010. 47
- [138] Jared J. Crochet, Juan G. Duque, James H. Werner, Brahim Lounis, Laurent Cognet, and Stephen K. Doorn. [Disorder limited exciton transport in colloidal single-wall carbon nanotubes](#). *Nano Letters*, 12(10) :5091–5096, 2012. 47
- [139] Benjamin O. Tayo and Slava V. Rotkin. [Charge impurity as a localization center for singlet excitons in single-wall nanotubes](#). *Physical Review B*, 86(12), 2012. 48
- [140] Hideki Hirori, Kazunari Matsuda, Yuhei Miyauchi, Shigeo Maruyama, and Yoshihiko Kanemitsu. [Exciton localization of single-walled carbon nanotubes revealed by femtosecond excitation correlation spectroscopy](#). *Physical Review Letters*, 97(25) :257401, 2006. 48, 50
- [141] Carsten Georgi, Alexander A. Green, Mark C. Hersam, and Achim Hartschuh. [Probing Exciton Localization in Single-Walled Carbon Nanotubes Using High-Resolution Near-Field Microscopy](#). *ACS Nano*, 4(10) :5914–5920, October 2010. 48, 56
- [142] Jack A. Alexander-Webber, Clement Faugeras, Piotr Kossacki, Marek Potemski, Xu Wang, Hee Dae Kim, Samuel D. Stranks, Robert A. Taylor, and Robin J. Nicholas. [Hyperspectral imaging of exciton photoluminescence in individual carbon nanotubes controlled by high magnetic fields](#). *Nano Letters*, 14(9) :5194–5200, 2014. 49, 54
- [143] J. Lefebvre, P. Finnie, and Y. Homma. [Temperature-dependent photoluminescence from single-walled carbon nanotubes](#). *Physical Review B*, 70(4) :045419, July 2004. 49
- [144] Rodrigo B. Capaz, Catalin D. Spataru, Paul Tangney, Marvin L. Cohen, and Steven G. Louie. [Temperature Dependence of the Band Gap of Semiconducting Carbon Nanotubes](#). *Physical Review Letters*, 94(3) :036801, January 2005. 50
- [145] Tsuneya Ando. [Environment Effects on Excitons in Semiconducting Carbon Nanotubes](#). *Journal of the Physical Society of Japan*, 79(2) :024706, February 2010. 51
- [146] AM Van Oijen, J Köhler, J Schmidt, M Müller, and GJ Brakenhoff. 3-dimensional super-resolution by spectrally selective imaging. *Chemical Physics Letters*, 292(1-2) :183–187, 1998. 51
- [147] Lukas Novotny and Bert Hecht. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 2006. 52, 67, 215

- [148] Laurent Cognet, Dmitri A. Tsyboulski, and R. Bruce Weisman. [Subdiffraction far-field imaging of luminescent single-walled carbon nanotubes](#). *Nano Letters*, 8(2) :749–753, 2008. [52](#)
- [149] S Jaziri, R Ferreira, R Bennaceur, and G Bastard. Excitonic states of weakly one-dimensional quantum wires. *Il Nuovo Cimento D*, 17(11-12) :1513–1517, 1995. [56](#)
- [150] V Savona, S Haacke, and B Deveaud. Optical signatures of energy-level statistics in a disordered quantum system. *Physical Review Letters*, 84(1) :183, 2000. [56](#)
- [151] Y-S Park, Anton V Malko, Javier Vela, Yongfen Chen, Yagnaseni Ghosh, Florencio García-Santamaría, Jennifer A Hollingsworth, Victor I Klimov, and Han Htoon. Near-unity quantum yields of biexciton emission from cdse/cds nanocrystals measured using single-particle spectroscopy. *Physical Review Letters*, 106(18) :187401, 2011. [63](#)
- [152] John David Jackson. *Classical electrodynamics*. AAPT, 1999. [64](#)
- [153] Emily Shuk Chi Ching, Pui Tang Leung, and Kenneth Young. *Optical processes in microcavities-the role of quasi-normal modes*. World Scientific, Singapore, 1996. [65](#)
- [154] S Haroche. Fundamental systems in quantum optics. *Les Houches Summer School Session*, 53, 1992. [65](#)
- [155] Rémi Carminati, Alexandre Cazé, Da Cao, F Peragut, V Krachmalnicoff, Romain Pierrat, and Yannick De Wilde. Electromagnetic density of states in complex plasmonic systems. *Surface Science Reports*, 70(1) :1–41, 2015. [65](#)
- [156] Valérian Giesz. *Cavity-enhanced Photon-Photon Interactions With Bright Quantum Dot Sources*. PhD thesis, 2015. Thèse de doctorat dirigée par Sénellart, Pascale Nanophysique Paris Saclay 2015. [69](#)
- [157] Ph Goy, JM Raimond, M Gross, and S Haroche. Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission. *Physical Review Letters*, 50(24) :1903, 1983. [70](#)
- [158] F De Martini, G Innocenti, GR Jacobovitz, and P Mataloni. Anomalous spontaneous emission time in a microscopic optical cavity. *Physical Review Letters*, 59(26) :2955, 1987. [70](#)
- [159] Wolf von Klitzing, Romain Long, Vladimir S Ilchenko, Jean Hare, and Valérie Lefevre-Seguin. Tunable whispering gallery modes for spectroscopy and cqed experiments. *New journal of physics*, 3(1) :14, 2001. [70](#)

-
- [160] L Collot, V Lefèvre-Seguin, M Brune, JM Raimond, and S Haroche. Very high-Q whispering-gallery mode resonances observed on fused silica microspheres. *EPL (Europhysics Letters)*, 23(5) :327, 1993. [70](#)
- [161] Yves Candéla. *Microcavités de silice : Excitation par fibre des modes de galerie et fonctionnalisation par des nanocristaux de silicium*. PhD thesis, 2011. [70](#)
- [162] Vladimir S Ilchenko, X Steve Yao, and Lute Maleki. Pigtailling the high-q microsphere cavity : a simple fiber coupler for optical whispering-gallery modes. *Optics Letters*, 24(11) :723–725, 1999. [70](#)
- [163] Ming Cai, Oskar Painter, and Kerry J Vahala. Observation of critical coupling in a fiber taper to a silica-microsphere whispering-gallery mode system. *Physical Review Letters*, 85(1) :74, 2000. [70](#)
- [164] CJ Hood, TW Lynn, AC Doherty, AS Parkins, and HJ Kimble. The atom-cavity microscope : Single atoms bound in orbit by single photons. *Science*, 287(5457) :1447–1453, 2000. [71](#)
- [165] Kerry J Vahala. Optical microcavities. *nature*, 424(6950) :839, 2003. [71](#)
- [166] Konstantin Ott. *Towards a squeezing-enhanced atomic clock on a chip*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, September 2016. [71](#), [72](#), [107](#), [109](#), [224](#)
- [167] Francesco Ferri. Couplage fort entre le mode d’une cavité fibrée et un réseau d’atomes commensurable : un nouveau dispositif pour l’intrication multi-particule avec contrôle sur les atomes individuels. 2018. [71](#), [72](#)
- [168] Mathieu Munsch. *Étude Du Régime de Purcell Pour Une Boîte Quantique Unique Dans Une Microcavité Semiconductrice. Vers Une Non-Linéarité Optique Géante*. PhD thesis, 2009. [73](#)
- [169] Andrei Faraon, Paul E Barclay, Charles Santori, Kai-Mei C Fu, and Raymond G Beausoleil. Resonant enhancement of the zero-phonon emission from a colour centre in a diamond cavity. *Nature Photonics*, 5(5) :301, 2011. [74](#)
- [170] Edwin T Jaynes and Frederick W Cummings. Comparison of quantum and semiclassical radiation theories with application to the beam maser. *Proceedings of the IEEE*, 51(1) :89–109, 1963. [75](#)
- [171] Paola Borri, Wolfgang Langbein, Stephan Schneider, Ulrike Woggon, Roman L Sellin, Dongxun Ouyang, and Dieter Bimberg. Ultralong dephasing time in ingaas quantum dots. *Physical Review Letters*, 87(15) :157401, 2001. [75](#)

- [172] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gérard. [Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot](#). *Nature Physics*, 2(11) :759–764, November 2006. 75
- [173] Thomas Grange, Gaston Hornecker, David Hunger, Jean-Philippe Poizat, Jean-Michel Gérard, Pascale Senellart, and Alexia Auffèves. Cavity-funneled generation of indistinguishable single photons from strongly dissipative quantum emitters. *Physical Review Letters*, 114(19) :193601, 2015. 75
- [174] Roland Albrecht, Alexander Bommer, Christian Deutsch, Jakob Reichel, and Christoph Becher. [Coupling of a single nitrogen-vacancy center in diamond to a fiber-based microcavity](#). *Phys. Rev. Lett.*, 110 :243602, June 2013. 75, 84
- [175] Simone Luca Portalupi, Gaston Hornecker, Valérian Giesz, Thomas Grange, Aristide Lemaître, Justin Demory, Isabelle Sagnes, Norberto D Lanzillotti-Kimura, Loïc Lanco, Alexia Auffèves, et al. Bright phonon-tuned single-photon source. *Nano Letters*, 15(10) :6290–6294, 2015. 75
- [176] LC Flatten, L Weng, Artur Branny, S Johnson, PR Dolan, AAP Trichet, Brian D Gerardot, and JM Smith. Microcavity enhanced single photon emission from two-dimensional wse2. *Applied Physics Letters*, 112(19) :191105, 2018. 75, 84, 85
- [177] Roland Albrecht, Alexander Bommer, Christoph Pauly, Frank Mücklich, Andreas W Schell, Philip Engel, Tim Schröder, Oliver Benson, Jakob Reichel, and Christoph Becher. Narrow-band single photon emission at room temperature based on a single nitrogen-vacancy center coupled to an all-fiber-cavity. *Applied Physics Letters*, 105(7) :073113, 2014. 75
- [178] Matthew W. Graham, Ying-Zhong Ma, Alexander A. Green, Mark C. Hersam, and Graham R. Fleming. [Pure optical dephasing dynamics in semiconducting single-walled carbon nanotubes](#). *The Journal of Chemical Physics*, 134(3) :034504, January 2011. 75
- [179] Gaston Hornecker, Alexia Auffèves, and Thomas Grange. Influence of phonons on solid-state cavity-qed investigated using nonequilibrium green’s functions. *Physical Review B*, 95(3) :035404, 2017. 78
- [180] P Michler, A Kiraz, C Becher, WV Schoenfeld, PM Petroff, Lidong Zhang, E Hu, and A Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. *science*, 290(5500) :2282–2285, 2000. 80
- [181] B Gayral, J-M Gérard, B Sermage, A Lemaitre, and C Dupuis. Time-resolved probing of the purcell effect for inas quantum boxes in gaas microdisks. *Applied Physics Letters*, 78(19) :2828–2830, 2001. 80

-
- [182] Emmanuelle Peter, Pascale Senellart, David Martrou, Aristide Lemaître, J Hours, JM Gérard, and Jacqueline Bloch. Exciton-photon strong-coupling regime for a single quantum dot embedded in a microcavity. *Physical Review Letters*, 95(6) :067401, 2005. [80](#), [85](#)
- [183] Haruhisa Soda, Ken-ichi Iga, Chiyuki Kitahara, and Yasuharu Suematsu. Gainasp/inp surface emitting injection lasers. *Japanese Journal of Applied Physics*, 18(12) :2329, 1979. [80](#)
- [184] A Dousse, L Lanco, J Suffczyński, E Semenova, A Miard, A Lemaître, I Sagnes, C Roblin, Jacqueline Bloch, and P Senellart. Controlled light-matter coupling for a single quantum dot embedded in a pillar microcavity using far-field optical lithography. *Physical Review Letters*, 101(26) :267404, 2008. [81](#), [85](#)
- [185] Matthew Pelton, Charles Santori, Jelena Vucković, Bingyang Zhang, Glenn S Solomon, Jocelyn Plant, and Yoshihisa Yamamoto. Efficient source of single photons : a single quantum dot in a micropost microcavity. *Physical Review Letters*, 89(23) :233602, 2002. [81](#)
- [186] JM Gérard, B Sermage, B Gayral, B Legrand, E Costard, and V Thierry-Mieg. Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity. *Physical Review Letters*, 81(5) :1110, 1998. [81](#)
- [187] J Pelal Reithmaier, G Sek, A Löffler, C Hofmann, S Kuhn, S Reitzenstein, LV Keldysh, VD Kulakovskii, TL Reinecke, and A Forchel. Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system. *Nature*, 432(7014) :197, 2004. [81](#), [85](#)
- [188] AK Nowak, SL Portalupi, V Giesz, O Gazzano, C Dal Savio, P-F Braun, K Karrai, C Arnold, L Lanco, I Sagnes, et al. Deterministic and electrically tunable bright single-photon source. *Nature Communications*, 5 :3240, 2014. [81](#), [85](#)
- [189] O Gazzano, S Michaelis De Vasconcellos, C Arnold, A Nowak, E Galopin, I Sagnes, L Lanco, A Lemaître, and P Senellart. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. *Nature Communications*, 4 :1425, 2013. [81](#)
- [190] Pascale Senellart, Glenn Solomon, and Andrew White. High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources. *Nature Nanotechnology*, 12(11) :1026, 2017. [81](#)
- [191] Oskar Painter, RK Lee, Axel Scherer, A Yariv, JD O’Brien, PD Dapkus, and I Kim. Two-dimensional photonic band-gap defect mode laser. *Science*, 284(5421) :1819–1821, 1999. [82](#)

- [192] Yoshihiro Akahane, Takashi Asano, Bong-Shik Song, and Susumu Noda. High-Q photonic nanocavity in a two-dimensional photonic crystal. *Nature*, 425(6961) :944, 2003. [82](#), [85](#)
- [193] Tomoyuki Yoshie, Axel Scherer, J Hendrickson, Galina Khitrova, HM Gibbs, G Rupper, C Ell, OB Shchekin, and DG Deppe. Vacuum rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity. *Nature*, 432(7014) :200, 2004. [82](#)
- [194] Dirk Englund, David Fattal, Edo Waks, Glenn Solomon, Bingyang Zhang, Toshihiro Nakaoka, Yasuhiko Arakawa, Yoshihisa Yamamoto, and Jelena Vučković. Controlling the spontaneous emission rate of single quantum dots in a two-dimensional photonic crystal. *Physical Review Letters*, 95(1) :013904, 2005. [82](#), [85](#)
- [195] Dirk Englund, Brendan Shields, Kelley Rivoire, Fariba Hatami, Jelena Vuckovic, Hongkun Park, and Mikhail D Lukin. Deterministic coupling of a single nitrogen vacancy center to a photonic crystal cavity. *Nano Letters*, 10(10) :3922–3926, 2010. [82](#)
- [196] Sejeong Kim, Johannes E Fröch, Joe Christian, Marcus Straw, James Bishop, Daniel Totonjian, Kenji Watanabe, Takashi Taniguchi, Milos Toth, and Igor Aharonovich. Photonic crystal cavities from hexagonal boron nitride. *Nature Communications*, 9(1) :2623, 2018. [82](#)
- [197] Martin Kuttge, F Javier García de Abajo, and Albert Polman. Ultrasmall mode volume plasmonic nanodisk resonators. *Nano Letters*, 10(5) :1537–1541, 2009. [83](#), [85](#)
- [198] Rémi Carminati, J-J Greffet, Carsten Henkel, and Jean-Marie Vigoureux. Radiative and non-radiative decay of a single molecule close to a metallic nanoparticle. *Optics Communications*, 261(2) :368–375, 2006. [83](#)
- [199] Daniel Ratchford, Farbod Shafiei, Suenne Kim, Stephen K Gray, and Xiaoqin Li. Manipulating coupling between a single semiconductor quantum dot and single gold nanoparticle. *Nano Letters*, 11(3) :1049–1054, 2011. [83](#), [85](#)
- [200] Kasey J Russell, Tsung-Li Liu, Shanying Cui, and Evelyn L Hu. Large spontaneous emission enhancement in plasmonic nanocavities. *Nature Photonics*, 6(7) :459, 2012. [83](#)
- [201] Thang B Hoang, Gleb M Akselrod, and Maiken H Mikkelsen. Ultrafast room-temperature single photon emission from quantum dots coupled to plasmonic nanocavities. *Nano Letters*, 16(1) :270–275, 2015. [83](#)

- [202] Yue Luo, Gabriella D Shepard, Jenny V Ardelean, Daniel A Rhodes, Bumho Kim, Katayun Barmak, James C Hone, and Stefan Strauf. Deterministic coupling of site-controlled quantum emitters in monolayer wse 2 to plasmonic nanocavities. *Nature Nanotechnology*, 13(12) :1137, 2018. 84
- [203] Alberto G Curto, Giorgio Volpe, Tim H Taminiau, Mark P Kreuzer, Romain Quidant, and Niek F van Hulst. Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna. *Science*, 329(5994) :930–933, 2010. 84
- [204] Hanno Kaupp, Thomas Hümmer, Matthias Mader, Benedikt Schleder, Julia Benedikter, Philip Haeusser, Huan-Cheng Chang, Helmut Fedder, Theodor W. Hänsch, and David Hunger. [Purcell-Enhanced Single-Photon Emission from Nitrogen-Vacancy Centers Coupled to a Tunable Microcavity](#). *Physical Review Applied*, 6(5), November 2016. 84, 85
- [205] P. R. Dolan, S. Adekanye, A. A. P. Trichet, S. Johnson, L. C. Flatten, Y. C. Chen, L. Weng, D. Hunger, H.-C. Chang, S. Castelletto, and J. M. Smith. [Robust, tunable, and high purity triggered single photon source at room temperature using a nitrogen-vacancy defect in diamond in an open microcavity](#). *Optics Express*, 26(6) :7056, March 2018. 84
- [206] Etienne Gaufres, Nicolas IZARD, Xavier Le Roux, Saïd Kazaoui, Delphine Marris-Morini, Eric Cassan, and Laurent Vivien. [Optical microcavity with semiconducting single-wall carbon nanotubes](#). *Optics Express*, 18(6) :5740, 2010. 86, 87
- [207] Etienne Gaufres, Nicolas IZARD, Adrien Noury, Xavier Le Roux, Gilles Rasigade, Alexandre Beck, and Laurent Vivien. Light emission in silicon from carbon nanotubes. *ACS Nano*, 6(5) :3813–3819, 2012. 86
- [208] Adrien Noury, Xavier Le Roux, Laurent Vivien, and Nicolas IZARD. [Controlling carbon nanotube photoluminescence using silicon microring resonators](#). *Nanotechnology*, 25(21) :215201, 2014. 86
- [209] F Biccari, F Sarti, N Caselli, A Vinattieri, E Durán-Valdeiglesias, W Zhang, C Alonso-Ramos, T H C Hoang, S Serna, X Le Roux, E Cassan, L Vivien, and M Gurioli. [Single walled carbon nanotubes emission coupled with a silicon slot-ring resonator](#). *Journal of Luminescence*, 2016. 87
- [210] Thi Hong Cam Hoang, Elena Durán-Valdeiglesias, Carlos Alonso-Ramos, Samuel Serna, Weiwei Zhang, Matteo Balestrieri, Al-Saleh Keita, Niccolò Caselli, Francesco Biccari, Xavier Le Roux, et al. Narrow-linewidth carbon nanotube emission in silicon hollow-core photonic crystal cavity. *Optics Letters*, 42(11) :2228–2231, 2017. 87, 88

- [211] Weihang Zhou, Yingjun Zhang, Xinhan Zhang, Chuan Tian, and Chunyan Xu. Brightly and directionally luminescent single-walled carbon nanotubes in a wedge cavity. *Applied Physics Letters*, 111(16) :163104, 2017. 87
- [212] Arko Graf, Laura Tropsf, Yuriy Zakharko, Jana Zaumseil, and Malte Christian Gather. [Strong coupling in single-walled carbon nanotube microcavities: Exciton-polaritons in the near-infrared.](#) *Nature Communications*, 7 :submitted, 2016. 87
- [213] Yuriy Zakharko, Arko Graf, and Jana Zaumseil. Plasmonic crystals for strong light–matter coupling in carbon nanotubes. *Nano Letters*, 16(10) :6504–6510, 2016. 88
- [214] Arko Graf and Jana Zaumseil. Electrical pumping and tuning of exciton-polaritons in carbon nanotube microcavities. *Nature Reviews Materials*, (July) :1–8, 2017. 88, 89
- [215] Arko Graf, Caroline Murawski, Yuriy Zakharko, Jana Zaumseil, and Malte C. Gather. [Infrared Organic Light-Emitting Diodes with Carbon Nanotube Emitters.](#) *Advanced Materials*, 30(12) :1706711, January 2018. 88
- [216] Fengnian Xia, Mathias Steiner, Yu-ming Lin, and Phaedon Avouris. A microcavity-controlled, current-driven, on-chip nanotube emitter at infrared wavelengths. *Nature Nanotechnology*, 3(10) :609, 2008. 88, 89
- [217] S. Imamura, R. Watahiki, R. Miura, T. Shimada, and Y. K. Kato. [Optical control of individual carbon nanotube light emitters by spectral double resonance in silicon microdisk resonators.](#) *Applied Physics Letters*, 102(16) :161102, April 2013. 90
- [218] R. Miura, S. Imamura, R. Ohta, A. Ishii, X. Liu, T. Shimada, S. Iwamoto, Y. Arakawa, and Y. K. Kato. [Ultralow mode-volume photonic crystal nanobeam cavities for high-efficiency coupling to individual carbon nanotube emitters.](#) *Nature Communications*, 5 :5580, 2014. 90, 91
- [219] H. Machiya, T. Uda, A. Ishii, and Y. K. Kato. [Spectral tuning of optical coupling between air-mode nanobeam cavities and individual carbon nanotubes.](#) *Applied Physics Letters*, 112(2) :021101, January 2018. 90
- [220] Svetlana Khasminskaya, Feliks Pyatkov, Benjamin S. Flavel, Wolfram H. Pernice, and Ralph Krupke. [Waveguide-Integrated Light-Emitting Carbon Nanotubes.](#) *Advanced Materials*, 26(21) :3465–3472, June 2014. 91
- [221] Akihiro Ishii, Xiaowei He, Nicolai F. Hartmann, Hidenori Machiya, Han Htoon, Stephen K. Doorn, and Yuichiro K. Kato. [Enhanced Single-Photon Emission from Carbon-Nanotube Dopant States Coupled to Silicon Microcavities.](#) *Nano Letters*, 18(6) :3873–3878, 2018. 93

-
- [222] A Jeantet, Y Chassagneux, T Claude, P Roussignol, J S Lauret, J Reichel, and C Voisin. [Exploiting One-Dimensional Exciton-Phonon Coupling for Tunable and Efficient Single-Photon Generation with a Carbon Nanotube](#). *Nano Letters*, 17(7) :4184–4188, 2017. 94, 95, 141, 201
- [223] Yves Colombe, Tilo Steinmetz, Guilhem Dubois, Felix Linke, David Hunger, and Jakob Reichel. [Strong atom–field coupling for Bose–Einstein condensates in an optical cavity on a chip](#). *Nature*, 450(7167) :272–276, 2007. 97
- [224] Erika Janitz, Maximilian Ruf, Mark Dimock, Alexandre Bourassa, Jack Sankey, and Lilian Childress. Fabry-perot microcavity for diamond-based photonics. *Physical Review A*, 92(4) :043844, 2015. 97
- [225] Daqing Wang, Hrishikesh Kelkar, Diego Martin-Cano, Tobias Utikal, Stephan Götzinger, and Vahid Sandoghdar. [Coherent coupling of a single molecule to a scanning Fabry-Perot microcavity](#). 7(2) :021014, 2017. 97, 262
- [226] Julia Benedikter, Hanno Kaupp, Thomas Hümmer, Yuejiang Liang, Alexander Bommer, Christoph Becher, Anke Krueger, Jason M. Smith, Theodor W. Hänsch, and David Hunger. [Cavity-Enhanced Single-Photon Source Based on the Silicon-Vacancy Center in Diamond](#). *Physical Review Applied*, 7(2) :024031, February 2017. 97
- [227] Didier Dangoisse. Les lasers. 2013. 100
- [228] G Rempe, RJ Thompson, H Jeffrey Kimble, and Ramin Lalezari. Measurement of ultralow losses in an optical interferometer. *Optics Letters*, 17(5) :363–365, 1992. 105
- [229] Raoul Stöckle, Christian Fokas, Volker Deckert, Renato Zenobi, Beate Sick, Bert Hecht, and Urs P Wild. High-quality near-field optical probes by tube etching. *Applied Physics Letters*, 75(2) :160–162, 1999. 105
- [230] Jining Sun, J Li, Robert RJ Maier, Duncan Paul Hand, William Neil MacPherson, MK Miller, James Millar Ritchie, and X Luo. Fabrication of a side aligned optical fibre interferometer by focused ion beam machining. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 23(10) :105005, 2013. 105
- [231] K Watanabe, Jonathan Schrauwen, Arne Leinse, DV Thourhout, Rene Heideman, and Roel Baets. [Total reflection mirrors fabricated on silica waveguides with focused ion beam](#). *Electronics letters*, 45(17) :883–884, 2009. 105
- [232] Joanna Schmit and Katherine Creath. Extended averaging technique for derivation of error-compensating algorithms in phase-shifting interferometry. *Applied Optics*, 34(19) :3610–3619, 1995. 109

- [233] David Hunger, Christian Deutsch, Russell J Barbour, Richard J Warburton, and Jakob Reichel. Laser micro-fabrication of concave, low-roughness features in silica. *Aip Advances*, 2(1) :012119, 2012. 109
- [234] Aurélien AP Trichet, Philip R Dolan, David M Coles, Gareth M Hughes, and Jason M Smith. Topographic control of open-access microcavities at the nanometer scale. *Optics express*, 23(13) :17205–17216, 2015. 110
- [235] Kamran Shayan, Xiaowei He, Yue Luo, Claire Rabut, Xiangzhi Li, Nicolai F. Hartmann, Jeffrey L. Blackburn, Stephen K. Doorn, Han Htoon, and Stefan Strauf. [Suppression of exciton dephasing in sidewall-functionalized carbon nanotubes embedded into metallo-dielectric antennas](#). *Nanoscale*, 10(26) :12631–12638, 2018. 112, 141
- [236] Xiaowei He, Liuyang Sun, Brendan J Gifford, Sergei Tretiak, Andrei Piryatinski, Xiaoqin Li, Han Htoon, and Stephen K Doorn. Intrinsic limits of defect-state photoluminescence dynamics in functionalized carbon nanotubes. *Nanoscale*, 11(18) :9125–9132, 2019. 112, 141, 202
- [237] LR Brovelli and U Keller. [Simple analytical expressions for the reflectivity and the penetration depth of a Bragg mirror between arbitrary media](#). *Optics Communications*, 116(4) :343–350, 1995. 113
- [238] Julia Benedikter, Thomas Hümmer, Matthias Mader, Benedikt Schlederer, Jakob Reichel, Theodor W Hänsch, and David Hunger. Transverse-mode coupling and diffraction loss in tunable fabry-pérot microcavities. *New Journal of Physics*, 17(5) :053051, 2015. 125
- [239] HEJ Bennett and JO Porteus. [Relation between surface roughness and specular reflectance at normal incidence](#). *JOSA*, 51(2) :123–129, 1961. 128
- [240] Jean M Bennett. [Recent developments in surface roughness characterization](#). *Measurement Science and Technology*, 3(12) :1119, 1992. 128
- [241] Takayuki Tomaru, Toshikazu Suzuki, Tomiyoshi Haruyama, Takakazu Shintomi, Akira Yamamoto, Tomohiro Koyama, and Rui Li. Vibration analysis of cryocoolers. *Cryogenics*, 44(5) :309–317, 2004. 134
- [242] C. I. Chung, W. J. Hennessey, and M. H. Tusim. [Frictional behavior of solid polymers on a metal surface at processing conditions](#). 17(1) :9–20. 143
- [243] J. C. Burton, P. Taborek, and J. E. Rutledge. [Temperature dependence of friction under cryogenic conditions in vacuum](#). 23(2) :131–137. 143
- [244] Gunther Hartwig. *Polymer properties at room and cryogenic temperatures*. Springer Science & Business Media, 2013. 144, 244

-
- [245] Hyun-Joon Kim and Dae-Eun Kim. Nano-scale friction : A review. *International Journal of Precision Engineering and Manufacturing*, 10(2) :141–151, 2009. [144](#)
- [246] John Bechhoefer. [Feedback for physicists: A tutorial essay on control](#). 77(3) :783–836. [151](#), [266](#)
- [247] Karl Johan Åström and Tore Hägglund. *PID controllers : theory, design, and tuning*, volume 2. Instrument society of America Research Triangle Park, NC, 1995. [152](#), [162](#)
- [248] Xilinx. *Zynq-7000 All Programmable SoC Overview.*, 2016. Rapport technique. [155](#)
- [249] F Seidler. [Digital high bandwidth feedback controller](#). Master’s thesis, Universität Bonn, 2015. [156](#), [257](#)
- [250] Andrew D Ludlow, Martin M Boyd, Jun Ye, Ekkehard Peik, and Piet O Schmidt. Optical atomic clocks. *Reviews of Modern Physics*, 87(2) :637, 2015. [156](#), [258](#)
- [251] J Helmcke, SA Lee, and John L Hall. Dye laser spectrometer for ultrahigh spectral resolution : design and performance. *Applied optics*, 21(9) :1686–1694, 1982. [156](#), [257](#)
- [252] R. W. P. Drever, J. L. Hall, F. V. Kowalski, J. Hough, G. M. Ford, A. J. Munley, and H. Ward. [Laser phase and frequency stabilization using an optical resonator](#). 31(2) :97–105. [156](#), [258](#)
- [253] T. W. Hansch and B. Couillaud. [Laser frequency stabilization by polarization spectroscopy of a reflecting reference cavity](#). 35(3) :441–444. [156](#), [260](#)
- [254] Emeline Andrieux, Thomas Zanon, Malo Cadoret, Abdallah Rihan, and Jean-Jacques Zondy. [500 GHz mode-hop-free idler tuning range with a frequency-stabilized singly resonant optical parametric oscillator](#). 36(7) :1212. [159](#)
- [255] Eric R.I. Abraham and Eric A. Cornell. [Teflon feedthrough for coupling optical fibers into ultrahigh vacuum systems](#). *Appl. Opt.*, 37(10) :1762–1763, Apr 1998. [169](#)
- [256] S Salapaka, A Sebastian, JP Cleveland, and MV Salapaka. Design, identification and control of a fast nanopositioning device. In *Proceedings of the 2002 American Control Conference (IEEE Cat. No. CH37301)*, volume 3, pages 1966–1971. IEEE, 2002. [170](#)
- [257] L Neuhaus. *PyRPL*, 2016. Librairie Python. [170](#), [254](#)

- [258] Albert Ryou and Jonathan Simon. Active cancellation of acoustical resonances with an fpga fir filter. *Review of Scientific Instruments*, 88(1) :013101, 2017. 170
- [259] Marcelo Alejandro Luda, Martin Drechsler, Christian Tomás Schmiegelow, and Jorge Codnia. Compact embedded device for lock-in measurements and experiment active control. *Review of Scientific Instruments*, 90(2) :023106, 2019. 170
- [260] Léonard Monniello, Huy-Nam Tran, Rémy Vialla, Guillaume Prévot, Said Tahir, Thierry Michel, and Vincent Jourdain. [Comprehensive model of the optical spectra of carbon nanotubes on a substrate by polarized microscopy.](#) *Phys. Rev. B*, 99 :115431, Mar 2019. 196
- [261] Brian Henderson and G Frank Imbusch. *Optical spectroscopy of inorganic solids*, volume 44. Oxford University Press, 2006. 196
- [262] Vasili Perebeinos and Phaedon Avouris. [Phonon and Electronic Nonradiative Decay Mechanisms of Excitons in Carbon Nanotubes.](#) *Physical Review Letters*, 101(5) :057401, 2008. 199
- [263] Ibrahim Sarpkaya, Zhengyi Zhang, William Walden-Newman, Xuesi Wang, James Hone, Chee W Wong, and Stefan Strauf. [Prolonged spontaneous emission and dephasing of localized excitons in air-bridged carbon nanotubes.](#) *Nature Communications*, 4 :2152, 2013. 199
- [264] K. B. Arnardottir, O. Kyriienko, M. E. Portnoi, and I. A. Shelykh. [One-dimensional Van Hove polaritons.](#) *Physical Review B*, 87(12) :125408, March 2013. 204
- [265] Shen Zhao, Julien Lavie, Loïc Rondin, Lucile Orcin-Chaix, Carole Diederichs, Philippe Roussignol, Yannick Chassagneux, Christophe Voisin, Klaus Müllen, Akimitsu Narita, Stéphane Campidelli, and Jean-Sébastien Lauret. [Single photon emission from graphene quantum dots at room temperature.](#) *Nature Communications*, 9(1) :3470, August 2018. 205
- [266] M.S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, R. Saito, and a. Jorio. [Raman spectroscopy of carbon nanotubes.](#) *Physics Reports*, 409(2) :47–99, 2005. 208
- [267] A. Jorio, A. G. Souza Filho, G. Dresselhaus, M. S. Dresselhaus, A. K. Swan, M. S. Ünlü, B. B. Goldberg, M. A. Pimenta, J. H. Hafner, C. M. Lieber, and R. Saito. [G -band resonant Raman study of 62 isolated single-wall carbon nanotubes.](#) *Physical Review B*, 65(15) :155412, March 2002. 209
- [268] A Jorio, MA Pimenta, AG Souza Filho, R Saito, G Dresselhaus, and MS Dresselhaus. Characterizing carbon nanotube samples with resonance raman scattering. *New Journal of Physics*, 5(1) :139, 2003. 209

-
- [269] Christian Thomsen and Stephanie Reich. [Raman Scattering in Carbon Nanotubes](#). In Manuel Cardona and Roberto Merlin, editors, *Light Scattering in Solid IX*, Topics in Applied Physics, pages 115–234. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2007. [209](#)
- [270] A. Jorio, G. Dresselhaus, and M. S. Dresselhaus, editors. *Carbon Nanotubes : Advanced Topics in the Synthesis, Structure, Properties, and Applications*. Number v. 111 in Topics in applied physics. Springer, Berlin ; New York, 2008. OCLC : ocn154712378. [209](#)
- [271] Hidekatsu Suzuura and Tsuneya Ando. Phonons and electron-phonon scattering in carbon nanotubes. *Physical review B*, 65(23) :235412, 2002. [211](#)
- [272] Jean-Jacques Greffet, Marine Laroche, and François Marquier. Impedance of a nanoantenna and a single quantum emitter. *Physical Review Letters*, 105(11) :117701, 2010. [215](#), [216](#)
- [273] Claude Cohen-Tannoudji, Bernard Diu, and Franck Laloë. *Mécanique Quantique- : Nouvelle édition*, volume 2. EDP sciences, 2018. [217](#)
- [274] Birgit Krummheuer, Vollrath Martin Axt, and Tilmann Kuhn. Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots. *Physical Review B*, 65(19) :195313, 2002. [217](#), [220](#)
- [275] Anthony J Leggett, S Chakravarty, Alan T Dorsey, Matthew P A Fisher, Anupam Garg, and Wilhelm Zwerger. Dynamics of the dissipative two-state system. *Reviews of Modern Physics*, 59(1) :1, 1987. [218](#)
- [276] Chiranjeeb Roy and Stephen Hughes. Influence of electron–acoustic-phonon scattering on intensity power broadening in a coherently driven quantum-dot–cavity system. *Physical Review X*, 1(2) :021009, 2011. [220](#)
- [277] H Dekker. Noninteracting-blip approximation for a two-level system coupled to a heat bath. *Physical Review A*, 35(3) :1436, 1987. [220](#)
- [278] Gerald D Mahan. *Many-particle physics*. Springer Science, 2013. [220](#)
- [279] Thomas D Barrett, Thomas H Doherty, and Axel Kuhn. Pushing purcell-enhancement beyond its limits. *arXiv preprint arXiv :1903.08628*, 2019. [221](#)
- [280] Sebastien Garcia. *Fiber Interfaces between single atoms and single photons*. Theses, Ecole normale supérieure - ENS PARIS, September 2015. [223](#), [224](#)
- [281] Konstantin Ott, Sebastien Garcia, Ralf Kohlhaas, Klemens Schüppert, Peter Rosenbusch, Romain Long, and Jakob Reichel. Millimeter-long fiber fabry-perot cavities. *Optics express*, 24(9) :9839–9853, 2016. [223](#)

BIBLIOGRAPHIE

- [282] Benjamin Besga. *Micro-cavité Fabry Pérot fibrée : une nouvelle approche pour l'étude des polaritons dans des hétérostructures semi-conductrices*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2013. [224](#)
- [283] Torben Pöpplau. *En préparation*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2019. [224](#)
- [284] Fedja Orucevic. *Production de microtores de silice sur silicium : excitation et caractérisation de leurs modes de galerie*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2007. [225](#)
- [285] RE Wagner and WJ Tomlinson. [Coupling efficiency of optics in single-mode fiber components](#). *Applied optics*, 21(15) :2671–2688, 1982. [233](#)
- [286] W. B. Joyce and B. C. DeLoach. [Alignment of gaussian beams](#). *Appl. Opt.*, 23(23) :4187–4196, December 1984. [234](#)
- [287] Allan G. Piersol and Thomas L. Paez. *Harris' Shock and Vibration Handbook , Sixth Edition*. McGraw-Hill New York, 2010. [237](#), [239](#), [241](#)
- [288] Georges Asch and Bernard Poussery. *Les capteurs en instrumentation industrielle-8e éd.* Dunod, 2017. [241](#)
- [289] David L. Platus. [Negative-stiffness-mechanism vibration isolation systems](#). In *Optomechanical Engineering and Vibration Control*, volume 3786, pages 98–106. International Society for Optics and Photonics. [242](#), [243](#)
- [290] Jack Dankowski. State of the art vibration isolation of large coordinate measuring machine with an adverse environment. [242](#)
- [291] Richard Gordon Budynas, J Keith Nisbett, et al. *Shigley's mechanical engineering design*, volume 8. McGraw-Hill New York, 2008. [242](#), [243](#)
- [292] Klaus D Timmerhaus and Richard P Reed. *Cryogenic engineering : fifty years of progress*. Springer Science & Business Media, 2007. [244](#)
- [293] Clarence Zener. *Elasticity and anelasticity of metals*. University of Chicago press, 1948. [244](#)
- [294] M. Kellomäki, J. Å ström, and J. Timonen. [Rigidity and Dynamics of Random Spring Networks](#). 77(13) :2730–2733. [246](#)
- [295] M F Ashby, A G Evans, N A Fleck, L J Gibson, J W Hutchinson, and H N G Wadley. *Metal Foams : A Design Guide*. Butterworth-Heinemann, 2000. [246](#)
- [296] Edward P Furlani. *Permanent magnet and electromechanical devices : materials, analysis, and applications*. Academic press, 2001. [247](#)

-
- [297] Erika Janitz, Maximilian Ruf, Yannik Fontana, Jack Sankey, and Lilian Childress. [High mechanical bandwidth fiber-coupled fabry-perot cavity](#). *Opt. Express*, 25(17) :20932–20943, Aug 2017. 249, 251, 260
- [298] Leonhard Neuhaus. *Cooling a macroscopic mechanical oscillator close to its quantum ground state*. Theses, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, December 2016. 254
- [299] W Kester. [Adc input noise: The good, the bad, and the ugly. is no noise good noise?](#) *Analog Dialogue*, 40(1), 2006. 255, 256
- [300] L Neuhaus. *Adding voltage regulators for the RedPitaya output stage*, 2016. Correctif RedPitaya. 257
- [301] Oussama Mhibik, Thu-Hien My, David Pabœuf, Fabien Bretenaker, and Cyril Drag. [Frequency stabilization at the kilohertz level of a continuous intracavity frequency-doubled singly resonant optical parametric oscillator](#). 35(14) :2364–2366. 257
- [302] Jose Gallego, Sutapa Ghosh, Seyed Khalil Alavi, Wolfgang Alt, Miguel Martinez-Dorantes, Dieter Meschede, and Lothar Ratschbacher. High-finesse fiber fabry-perot cavities : stabilization and mode matching analysis. *Applied Physics B*, 122(3) :47, 2016. 260
- [303] Johannes FS Brachmann, Hanno Kaupp, Theodor W Hänsch, and David Hunger. Photothermal effects in ultra-precisely stabilized tunable microcavities. *Optics express*, 24(18) :21205–21215, 2016. 260
- [304] G. Camy, R. Amer, and N. Courtier. [Une nouvelle technique de stabilisation en fréquence d’un laser sur une cavité de fabry-perot](#). 22(12) :1835–1840. 262
- [305] Manuel Uphoff, Manuel Brekenfeld, Gerhard Rempe, and Stephan Ritter. Frequency splitting of polarization eigenmodes in microscopic fabry-perot cavities. *New Journal of Physics*, 17(1) :013053, 2015. 262
- [306] John Bechhoefer. Kramers–kronig, bode, and the meaning of zero. *American Journal of Physics*, 79(10) :1053–1059, 2011. 267, 268

INDEX

- AFM : Microscopie par force atomique, [29](#)
AOM : Modulateur acousto-optique, [264](#)
ATP : Séparation en deux phases aqueuses, [26](#)
- CNA : Convertisseur numérique/analogique, [255](#)
CNT : Nanotube de carbone, [8](#)
CoMoCAT : Voie de synthèse de CNT par catalyse Cobalt/Molybdène, [25](#)
CQED : Électrodynamique quantique en cavité, [69](#)
CVD : Dépôt chimique en phase vapeur, [24](#)
- ENOB : Nombre effectif de bits utiles, [255](#)
- FPGA : Réseau logique programmable, [152](#)
FSR : Intervalle spectral libre, [98](#)
FWHM : Largeur à mi-hauteur, [34](#)
- HC : Méthode de stabilisation Hänsch-Couillaud, [156](#)
- PC : Polycarbonate, [142](#)
PDH : Méthode de stabilisation Pound-Drever-Hall, [156](#)
PFO ou PFH : Types de polyfluorènes, [25](#)
PID : Proportionnel, Intégral, Dérivatif, [149](#)
PL : Photoluminescence, [30](#)
PLE : Photoluminescence en excitation, [51](#)
PS : Polystyrène, [113](#)
PSB : Ailes de phonons, [33](#)
PZB : Première zone de Brillouin, [13](#)
- RBM : Mode de respiration radial, [208](#)
- SEM : Microscopie électronique à balayage, [70](#)
SINAD : Rapport signal sur bruit et distorsion, [256](#)
SPE : Émetteurs de photons uniques, [40](#)
- TEM : Microscopie électronique en transmission, [8](#)
TEM : Mode électromagnétique transverse., [180](#)
- ZPL : Raie à zéro phonon, [33](#)

LISTE DES SYMBOLES

- \mathbf{G} Tenseur de Green du champ.
- \mathbf{p} Vecteur moment dipolaire.
- (n, m) Indice de chiralité des nanotubes de carbone.
- $\beta = \kappa \int_0^\infty dt \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$, efficacité de la source.
- $\delta = \omega_{\text{cav}} - \omega_{\text{ém}}$, désaccord entre l'émetteur et la cavité.
- δL Amplitude spatiale des vibrations.
- $\delta\lambda = \frac{2}{p} \delta L$, amplitude spectrale des vibrations.
- η Rendement quantique de l'émetteur.
- γ Taux de relaxation total de l'émetteur en espace libre.
- γ^* Taux de déphasage pur de l'émetteur.
- γ^{NR} Taux de relaxation non radiative de l'émetteur.
- γ^{R} Taux de relaxation radiative de l'émetteur en espace libre.
- γ_{cav} Taux de relaxation de l'émetteur dans le mode de cavité.
- $\gamma_{\text{tot}} = \kappa + \gamma + \gamma^*$, taux de déphasage total.
- $\hbar\omega_{\text{ph}}$ Énergie d'un phonon.
- κ Taux de relaxation de la cavité.
- ρ_e Densité d'état.
- σ Rugosité quadratique moyenne ou écart-type d'un signal.
- $\tau_{\text{ém}}$ Temps de vie de l'émetteur.
- τ_{cav} Temps de stockage du photon dans la cavité.
- τ_{coh} Temps de cohérence de l'émetteur.
- d_{NT} Diamètre d'un nanotube de carbone.
- D_{vib} Distribution des vibrations brouillant les mesures.
- $F_p = \frac{4g^2}{\gamma\kappa}$, facteur de Purcell.
- $F_p^* = \frac{4g^2}{\gamma^{\text{R}}\gamma_{\text{tot}}}$, facteur de Purcell généralisé.

INDEX

- g Taux de couplage de Rabi.
- $g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t)I(t+\tau) \rangle}{\langle I^2(t) \rangle}$, corrélation de l'intensité.
- L_{air} Longueur maximale entre le miroir plan et le micro-miroir.
- L_{cons} Longueur de cavité de consigne.
- $L_{\text{FSR}} = \frac{\lambda^2}{2\text{FSR}\lambda}$, longueur propre au chemin optique perçu par le mode de cavité.
- L_g Profondeur de la dépression concave du micro-miroir.
- n Indice de réfraction.
- P Pertes dans la micro-cavité.
- p Indice du mode de cavité ($p \in \mathbb{N}^*$).
- P_{bal} Profil spectral de l'émission d'un CNT en cavité.
- Q_M Paramètre de Mandel.
- $Q_{\text{ém}} = \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$, facteur de qualité de l'émetteur.
- $Q_{\text{cav}} = \frac{\lambda}{\Delta\lambda}$, facteur de qualité de la cavité.
- $Q_{\text{eff}} = \frac{1}{Q_{\text{cav}}} + \frac{1}{Q_{\text{ém}}}$, facteur de qualité effectif.
- $R^* = \frac{m^*e^4}{2\hbar^2(4\pi\epsilon)^2}$, énergie de Rydberg de l'exciton.
- S Spectre d'émission $S_{\text{émi}}$ ou d'absorption S_{abs} .
- S_{11} Transition optique de plus basse énergie pour un CNT.
- S_{11}^* Transition optique de plus basse énergie pour un CNT dopé chimiquement.
- T_{cav} Profil lorentzien de la transmission du mode de cavité normalisé à 1.
- w Largeur d'un faisceau laser ou d'un mode de cavité.
- X_2 Pic d'absorption des CNT à ~ 200 meV de l'énergie de la S_{11} .
- Y Module de Young.
- \mathcal{F} Finesse de la cavité.
- $\mathcal{K} = K_p + \frac{1}{i\omega}K_i + i\omega K_d$, gain de la boucle de rétroaction.
- \mathcal{P} Fonction de transfert de l'actionneur rapide.
- \mathcal{R} Rayon de courbure du micro-miroir.
- \mathcal{S} Fonction de transfert de la mesure de la longueur de cavité.
- $\tilde{S} = S * T_{\text{cav}}$, spectre de l'émetteur convolué par T_{cav} .