



HAL
open science

Dynamique cohérente des polaritons de microcavité de semiconducteurs

Agnès Huynh

► **To cite this version:**

Agnès Huynh. Dynamique cohérente des polaritons de microcavité de semiconducteurs. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2002. Français. NNT: . tel-00002490

HAL Id: tel-00002490

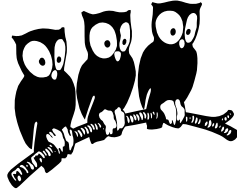
<https://theses.hal.science/tel-00002490>

Submitted on 26 Feb 2003

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.

ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE
DÉPARTEMENT DE PHYSIQUE



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI
Spécialité : Physique des solides

présentée par

Agnès Huÿnh

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

**Dynamique cohérente des polaritons
de microcavité de semiconducteurs**

Soutenue le 28 octobre 2002 devant le jury composé de :

M. Daniel CHEMLA

M. Claude FABRE

M. Bernard GIL

M. Daniel LE SI DANG

M. Jean-Yves MARZIN

M. Philippe ROUSSIGNOL

M. Jérôme TIGNON

Rapporteur

Rapporteur

Directeur de thèse

À ma mère

Remerciements



Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique de la Matière Condensée à l'École Normale Supérieure, et je tiens à remercier son directeur Claude Delalande pour m'y avoir accueillie. Ma thèse n'aurait pu être menée à bien sans son suivi ainsi que celui de mon autre « chef » et directeur de thèse, Philippe Roussignol. Merci pour leur gentillesse, et la confiance qu'ils m'ont accordée.

Merci à Daniel Chemla, Claude Fabre, Bernard Gil, Daniel Le Si Dang et Jean-Yves Marzin de m'avoir fait l'honneur de participer à mon jury de thèse. Je tiens à souligner tout le plaisir que j'ai eu à collaborer avec Daniel Le Si Dang ; je le remercie ainsi que Régis André et Robert Romestain pour nous avoir fourni des échantillons de très bonne qualité et pour nos nombreux échanges. Je remercie aussi tout particulièrement Daniel Chemla, professeur à Berkeley, qui lors de brèves visites à l'ENS, s'est toujours intéressé à l'avancement de notre travail, et a répondu avec gentillesse à mes questions sur le régime cohérent.

La réalisation de ce travail doit énormément à l'encadrement de Jérôme Tignon. Qu'il trouve ici mes plus sincères remerciements. C'est à lui que je dois la maîtrise des manips, et j'ai énormément appris grâce à ses multiples compétences, tant sur le plan expérimental (alignement des lasers, cryogénie... et même changement du code de la porte!) que théorique. Nos nombreuses réflexions sur notre travail et parfois sur notre enseignement, la physique en général et bien d'autres sujets ont été ô combien enrichissantes. Sa patience vis-à-vis de mes nombreuses questions, son enthousiasme et son optimisme ont été un encouragement permanent, de même que sa confiance en mes idées et mon travail.

J'ai eu la chance d'interagir avec les théoriciens Gérard Bastard et Robson Ferreira, toujours disponibles pour répondre à nos questions. Merci aussi Gérard, pour les sympathiques discussions sur diverses expositions et sur les roses (notamment la rose « Agnès »)! Je remercie aussi Christos Flytzanis, et aussi les stagiaires qui ont travaillé avec moi, en particulier Olof Larsson, avec qui j'ai effectué les expériences en angle.

Je suis redevable à nombre de personnes sans qui ces expériences d'optique à basse température ne peuvent se faire : au service hélium qui m'ont fourni les bidons 65 CD, Samir Ben Youssef, Sébastien Chavin, puis Olivier Andrieu ; aux mécaniciens Noël Le Rolland et Laurent Réa pour les pièces mécaniques et pour de petits services. Un remerciement spécial à David Darson, électronicien de choc, dont l'aide fut précieuse (pour les soudures, et la barette de diodes qui a incroyablement accéléré la mesure de spectres... mais aussi pour t'être occupé des virus de mon PC!) et à Christine Martinet pour les échantillons de boîtes quantiques contactés dont je cassais sans cesse les fils fragiles... Merci à Didier Courtiade et Jean-François Point, en particulier pour l'installation de la poulie qui m'a permis de faire le transfert d'hélium à la seule force de mes petits bras...

Merci aussi aux secrétaires du laboratoire, Anne Matignon et Marie-Christine Launay-Pelletan ; à Monique Brouat, Anne Condamine, Dominique Giafferi pour la bibliothèque, et Jean-Paul Auquier pour la reprographie (notamment de quelques exemplaires de ma thèse en urgence...); et pour l'informatique, à Alain Launay (qui a passé beaucoup de temps à tenter de résoudre les diverses et multiples problèmes de mon ordinateur) et Zaire Dissi.

Un grand merci à Michel Voos, directeur du département de physique, responsable de ma célébrité bientôt disparue (cf. Journal du CNRS...), et avec qui j'ai passé de nombreux moments à bavarder dans le couloir. Je le remercie aussi pour ses multiples conseils. J'ai aussi toujours apprécié ceux d'Yves Guldner ainsi que sa sympathie et sa bonne humeur. J'ai eu la chance qu'Angela Vasanelli et Cécile Kammerer fassent leur thèse exactement en même temps que moi, et apportent un peu de douceur féminine! Merci aussi aux personnes que j'ai cotoyées, Jean-Sébastien Lauret, Guillaume Cassabois, Christophe Voisin, Emmanuelle Deleporte, Sophie Hameau, Robert Mouillet, Louis-Anne de Vaultier, Sébastien Cortez, Olivier Krebs, Paul Voisin, Patrice Mathieu, Frédéric Boyer, Jean-Marc Berroir, Bernard Plaçais, Mokthar Adda-Bedia et les visiteurs tunisiens (en particulier Maha Maghrebi, à qui je souhaite une bonne fin de thèse).

J'ai partagé mon bureau notamment avec Frédéric Caupin, parfois certains soirs et weekends. Merci pour l'animation qu'il a créée dans le bureau! Je lui dois ainsi qu'à Chi-Tuong Pham la présentation en `teX` de ce mémoire... Je remercie aussi Charles Berger, autre cobureau, et aussi les secrétaires et voisines Régine André, Marie-Françoise Duclos et Anne-France Seyer.

Enfin, je dois remercier les amis grâce à qui la vie à l'École Normale a été si agréable (outre la proximité des cookies de la rue de la Montagne Ste Geneviève); ce sont ceux qui ont partagé les déjeuners au RU, les pauses café, les goûters (gâteaux aux pommes du RU, ou ceux de la grand-mère d'Alberto) et d'autres bons moments : Jérôme Tignon encore, mais aussi Didier Herschkowitz et Antonio Turiel (ZR6), Arezki Boudaoud, Frédéric Caupin, Hervé Henry, Christophe Mora, Chi-Tuong Pham, et Alberto Rosso (les bosons de la DC21), Xavier

Leyronas, Iacopo Carusotto (qui a égayé le bureau, à travers la cloison, de ses rires sonores...), Mathieu Poujade, Sébastien Moulinet, et Ludovic Pauchard.

Et pour la santé et le bon équilibre indispensables à la réussite d'une thèse, je dois remercier les chocolats Valrhona et les chevaux du centre équestre d'Orsay (spécialement Tancrede).

Table des matières

Introduction	13
1 Polaritons de semiconducteurs	17
1.1 Le puits quantique	17
1.1.1 États excitoniques	17
1.1.2 Couplage avec le champ	21
1.1.3 Saturation avec la densité de porteurs	23
1.2 Microcavité de semiconducteurs	23
1.2.1 Rappels sur la cavité Fabry-Pérot	23
1.2.2 Miroir de Bragg	26
1.2.3 Microcavité de semiconducteurs	28
1.3 Puits quantiques en cavité	31
1.3.1 Couplage fort	31
1.3.2 Énergies propres et polaritons	32
1.3.3 Relation de dispersion	35
1.4 Conclusion	37
2 Mélange à quatre ondes	39
2.1 Principe de l'expérience	40
2.2 Systèmes à deux niveaux indépendants	41
2.2.1 Équations de Bloch optiques	42
2.2.2 Calcul du mélange à quatre ondes	44
2.3 Cas du semiconducteur	47
2.3.1 Équations de Bloch pour les semiconducteurs	47
2.3.2 Modèle de la polarisation effective	52
2.4 Conclusion	55
3 Échantillons et dispositif expérimental	57
3.1 Échantillons de microcavité II-VI	57
3.1.1 Description des microcavités	57
3.1.2 Caractéristiques des matériaux	59
3.1.3 Caractéristiques du puits et de la microcavité	62
3.2 Source laser	64

3.2.1	Description de la source laser	64
3.2.2	Montage d'autocorrélation	65
3.3	Caractérisation des échantillons	67
3.3.1	Montage expérimental	68
3.3.2	Anticroisement	69
3.3.3	Courbe de dispersion	70
3.3.4	Largeur du mode de cavité	72
3.3.5	Réflectivité à basse puissance à la résonance : largeur des modes	72
3.3.6	Comparaison avec les spectres calculés	73
3.3.7	Transition vers le couplage faible	74
3.4	Dispositif expérimental pour les expériences de mélange à quatre ondes	75
3.4.1	Montage expérimental	75
3.4.2	Mélange à quatre ondes résolu en angle	77
3.4.3	Densité de porteurs injectés	79
3.5	Conclusion	79
4	Détermination expérimentale des non-linéarités intrinsèques	81
4.1	Préliminaires	82
4.1.1	Principe de l'expérience	82
4.1.2	Description des résultats expérimentaux	82
4.1.3	Contraste des oscillations	84
4.2	Modélisation	85
4.2.1	Discussion des hypothèses	85
4.2.2	Équations de Maxwell-Bloch	88
4.3	Résultats numériques	93
4.3.1	Évolution temporelle à l'ordre 1	93
4.3.2	Évolution temporelle à l'ordre 3	93
4.3.3	Ti-FWM dû à chaque non-linéarité	95
4.3.4	Contraste du signal de Ti-FWM	96
4.3.5	Conclusion	97
4.4	Comparaison théorie-expérience	97
4.4.1	Ajustement des courbes expérimentales	97
4.4.2	Détermination des non-linéarités	99
4.4.3	Conclusion	100
4.5	Excitation sélective d'un mode	100
4.5.1	Comparaison des deux modes de polaritons	100
4.5.2	Influence de la densité de porteurs	103
4.5.3	Influence du désaccord	104
4.5.4	Discussion	104
4.6	Conclusion	107

5 Étude angulaire	109
5.1 Mesures en incidence normale	110
5.1.1 Résultats expérimentaux	110
5.1.2 Calcul de l'élargissement collisionnel	113
5.1.3 Le modèle	113
5.1.4 Élargissement collisionnel à l'angle nul	116
5.1.5 Conclusion	118
5.2 Élargissement collisionnel : dépendance angulaire	119
5.2.1 Principe de l'expérience	119
5.2.2 Résultats expérimentaux	120
5.2.3 Modélisation	122
5.3 Élargissement collisionnel à angle constant	128
5.3.1 Résultats expérimentaux	128
5.3.2 Comparaison théorie-expérience	129
5.4 Conclusion	131
5.5 Régime de stimulation	132
5.5.1 Introduction	132
5.5.2 Excitation continue et hors résonance	134
5.5.3 Excitation résonante à l'angle magique	136
5.5.4 Temps de cohérence à l'angle magique	138
5.5.5 Discussion	140
5.6 Conclusion	144
Conclusion	147
Annexes	151
A Mélange à quatre ondes : cas des systèmes à deux niveaux	151
A.1 Résolution formelle des équations de Bloch optiques	151
A.2 Résolution analytique dans le cas d'impulsions de Dirac	153
B Équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs	157
B.1 Hamiltonien	157
B.2 Établissement des équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs	158
B.3 Modèle du champ local	160
B.4 Temps de montée et de déclin	162
C Signal de Ti-FWM dans la microcavité	165
D Calcul de la densité de porteurs	169
Bibliographie	171

Introduction

Depuis l'apparition des lasers à semiconducteurs dans les années 60, des progrès considérables ont été faits dans la croissance des matériaux. À la suite des premiers lasers à jonction $p-n$, les premiers dispositifs fonctionnant à température ambiante étaient basés sur des hétérojonctions (inventés en 1972 par Kroemer et Alferov, qui recevront le prix Nobel en l'an 2000 pour cette découverte) ; le confinement de la lumière et des porteurs dans une région de quelques micromètres cubes permettait d'abaisser énormément le courant-seuil du laser. Au début des années 80, une nouvelle étape fut franchie avec l'apparition de nouvelles technologies de croissance, telles que l'épitaxie par jets moléculaires (MBE pour « molecular beam epitaxy ») ou l'épitaxie en phase vapeur d'organo-métalliques (MOCVD pour « metal-organic chemical vapor deposition »), rendant possible l'élaboration de nanostructures formées de couches suffisamment fines pour que le mouvement des porteurs soit confiné quantiquement. Dans ces structures bidimensionnelles, les « puits quantiques », le contrôle du recouvrement des fonctions d'onde des électrons et des trous, et l'augmentation de l'interaction de la lumière et des porteurs, ont conduit, outre au laser à puits quantiques, à l'apparition de nombreux dispositifs (détecteurs, diodes électroluminescentes, lasers à cascade quantique...). La recherche se tourne aussi maintenant vers des structures de plus basse dimensionnalité, par exemple les boîtes quantiques, qui présentent un fort potentiel pour l'exploration de phénomènes physiques fondamentaux, comme le contrôle de l'émission de photons individuels, et pour la conception de dispositifs opto-électroniques (lasers, détecteurs...).

Depuis quelques années, l'étude de la modification de l'interaction matière-rayonnement en physique atomique commence à être étendue dans le domaine de la matière condensée. En effet, l'émission spontanée d'un matériau n'est pas une propriété intrinsèque, mais dépend de l'environnement avec lequel il est couplé. Dès 1946, Purcell propose de contrôler l'émission spontanée dans la gamme des micro-ondes d'un système de spins en le couplant avec un circuit électrique résonant [1]. La démonstration de l'inhibition ou de l'exaltation de l'émission spontanée a d'abord été faite en physique atomique, en plaçant les atomes entre des miroirs ou dans une cavité optique (pour une revue voir [2]). Il est même possible d'obtenir un régime de *couplage fort* entre les photons et plusieurs atomes [3]

ou un atome unique [4, 5] en cavité ; le couplage matière-rayonnement n'est plus perturbatif, l'émission d'un photon est réversible (le photon est émis et réabsorbé, et l'énergie est échangée entre le mode de la cavité et l'atome). De nouveaux états propres apparaissent pour le système ; ce sont des états mixtes photons-atomes.

Ces concepts ont été revisités dans le domaine de la matière condensée. Avec les progrès dans les techniques de microfabrication, un intérêt croissant s'est porté sur le contrôle des modes de photons dans des cavités à semiconducteurs de dimensions micrométriques (microrésonateurs, microcavité Fabry-Pérot) [6, 7]. Comme l'émission spontanée est une source de perte d'énergie et de bruit dans les lasers, le contrôle du taux d'émission doit permettre d'améliorer leurs performances. Ainsi sont apparus les lasers à émission de surface à cavité verticale (VCSEL pour « vertical cavity surface emitting laser »), composés d'un milieu actif (puits quantiques) inséré dans une microcavité Fabry-Pérot planaire. Ils présentent de nombreux avantages par rapport aux lasers à puits quantiques classiques, comme un fonctionnement monomode, imposé par la très petite longueur de la cavité, par un faisceau très peu divergent et surtout une plus grande extraction de la lumière [8, 9]. Ces types de nanostructures sont aussi à la base de diodes électroluminescentes [10]. La modification de l'émission spontanée est aussi observée ; une augmentation du taux de l'émission spontanée de boîtes quantiques placées dans des résonateurs en forme de micropiliers a été mise en évidence par J. M. Gérard *et al.* en 1998 [11] ; une augmentation plus forte encore est obtenue dans des microdisques en 1999 [12].

Le régime de couplage fort dans une microcavité de semiconducteurs contenant des puits quantiques a été pour la première fois mis en évidence par C. Weisbuch *et al.* [13]. La transition fondamentale du puits quantique est un état lié d'électron et de trou, l'*exciton*, qui n'est couplé qu'à un seul mode de photon dans la cavité. Il peut alors s'établir un régime de couplage fort entre l'exciton et le mode de la cavité, faisant apparaître des nouveaux états propres, les *polaritons de microcavité*, qui sont des états mixtes photon-exciton. Les microcavités en couplage fort ont été, depuis lors, l'objet d'une intense recherche [14, 15]. Le temps de vie des polaritons, leur dispersion et leur relaxation, notamment par interaction avec les phonons, ont été très étudiés [16, 17, 18] ; les travaux sur la photoluminescence sous excitation non-résonante révèlent une dynamique lente de l'émission (plusieurs centaines de ps), peu différente de celle d'un exciton nu [19]. Les caractéristiques de cette dynamique s'expliquent par l'existence d'une zone d'accumulation des polaritons (goulot de relaxation) qui inhibe le peuplement des polaritons en centre de zone [20, 21]. Une proposition d'Imamoglu *et al.*, au même moment, prévoit qu'il devrait être possible d'observer une relaxation stimulée par l'occupation des états finals en utilisant le caractère bosonique des polaritons [22]. En effet, les excitons, et donc les polaritons sont des bosons composites. De plus, par rapport à l'exciton nu, la dispersion des polaritons est fortement modifiée, et

en particulier, elle donne lieu à des densités d'états beaucoup plus faibles pour le polariton en centre de zone de Brillouin. Ainsi il serait possible d'obtenir un nombre d'occupation de ces états assez grand pour observer des effets bosoniques collectifs, comme la stimulation de la relaxation. Cet effet « boser » fut très discuté, puis discrédité après que l'affirmation d'une démonstration expérimentale [23] a été réfutée [24, 25] : la non-linéarité de l'émission, attribuée dans cette expérience à la stimulation de la relaxation, se produisait en fait lorsque le couplage fort n'existe plus, à haute densité de porteurs, et fut expliquée en terme de corrélations fermioniques électron-trou [25].

Cependant, le débat est relancé lorsque Dang *et al.* mesurent un comportement non-linéaire de l'émission dans une microcavité II-VI, qui permet de conserver le régime de couplage fort même sous forte excitation [26]. L'excitation en résonance avec le polariton de basse énergie a ensuite donné lieu à une meilleure compréhension du phénomène. Baumberg *et al.* montrent que lorsque ce polariton est excité à un angle d'incidence particulier, « l'angle magique », la relaxation des polaritons créés à cet angle vers l'état de plus basse énergie (en centre de zone de Brillouin) est stimulée par l'occupation de ces états finals [27]. De nombreuses expériences de pompe sonde [27, 28, 29] ou d'émission [30, 31, 32, 33, 34, 35, 36] ont depuis mis en évidence la stimulation de la diffusion polariton-polariton par occupation de l'état final. La possibilité d'obtenir une condensation de Bose [33] ainsi que des lasers « à polaritons », lasers *a priori* sans seuil [37], est toujours vivement débattue.

Dans ce contexte, nous nous intéressons à la dynamique des polaritons et à sa modification en régime de couplage fort. À des temps très courts après l'excitation du système par une impulsion laser, la dynamique est caractérisée par la perte de cohérence des porteurs excités. En effet, la phase initiale des porteurs excités, transmise par le champ électrique du laser d'excitation, est peu à peu perdue à cause de processus d'interaction des porteurs entre eux, avec les phonons, les défauts du cristal, etc.. Ainsi, la polarisation macroscopique décroît sur un temps caractéristique T_2 , temps de cohérence ou temps de déphasage de la polarisation (échelle de quelques centaines de fs à quelques ps). Le *mélange à quatre ondes* est une des techniques classiques de l'optique cohérente et non-linéaire qui permet d'étudier la dynamique de la polarisation. Cette technique a été appliquée de façon intensive à l'étude des semiconducteurs massifs et des nanostructures. Son utilisation a considérablement amélioré la compréhension des problèmes à N corps dans ces systèmes (pour une revue, on pourra se reporter notamment à [38, 39]). Dans le cas des microcavités, les oscillations de Rabi, témoins du couplage fort, ont été observées dans le signal de mélange à quatre ondes [40, 41]. M. Koch *et al.* montrent que ces oscillations présentent des caractéristiques particulières aux microcavités dues au couplage entre le champ électrique et la polarisation [42]. Les sources de non-linéarités dans les microcavités ont aussi été étudiées grâce à ce type d'expériences [43, 44, 45], ainsi que les effets de l'inhomogénéité [46, 47].

Ce travail de thèse est consacré à l'étude de la *dynamique des polaritons de microcavité*, au moyen *d'expériences de mélanges à quatre ondes*.

Le chapitre 1 introduit la notion d'exciton dans les puits quantiques, ainsi que les microcavités formées de miroirs de Bragg, avant de présenter les caractéristiques du régime de couplage fort entre l'exciton et le mode optique de la microcavité.

Dans le chapitre 2, nous rappelons le principe de l'expérience de mélange à quatre ondes. Nous présentons les fondements théoriques décrivant la réponse optique cohérente d'un semiconducteur, en particulier les équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs [48, 49]. Enfin, nous décrivons le *modèle de la polarisation effective*, dérivé du cadre théorique précédent par M. Wegener et D. S. Chemla [50]. Ce modèle, simplifié par rapport au traitement quantique microscopique, conserve l'essentiel de la physique tout en permettant une interprétation transparente des résultats. Il est utilisé pour analyser nos résultats au chapitre 4.

Le chapitre 3 est consacré à la description des échantillons de microcavité II-VI, et à leur caractérisation grâce à des mesures de réflectivité. Nous décrivons ensuite les montages expérimentaux et le principe de l'expérience de *mélange à quatre ondes résolu en angle*, pour l'étude de l'influence de la dispersion des polaritons (chap. 5).

Le chapitre 4 présente le travail que nous avons entrepris pour identifier la nature des non-linéarités qui gouvernent la dynamique des polaritons. Nous montrons comment l'analyse des oscillations de Rabi nous a permis de mesurer le poids relatif de la contribution des interactions coulombiennes par rapport à celle du blocage de Pauli.

Le chapitre 5 présente une étude angulaire du polariton de basse énergie. Nous mesurons la dépendance angulaire du temps de cohérence par l'expérience de mélange à quatre ondes résolu en angle. Les mesures sont analysées à l'aide d'un modèle initialement développé par Ciuti *et al.* [51] que nous adaptons aux matériaux et aux conditions de notre expérience. Nos résultats sont interprétés en terme d'échappement des polaritons de centre de zone vers le réservoir excitonique aux grands angles. De plus, sous excitation à « l'angle magique » nous étudions plus spécifiquement la signature du régime de stimulation sur la cohérence du système.

Chapitre 1

Polaritons de semiconducteurs

Les progrès considérables effectués dans les techniques de croissance de semiconducteurs, tels que l'épitanie par jets moléculaires, permettent d'obtenir des couches minces de semiconducteurs de haute qualité, avec un contrôle extrêmement précis de l'épaisseur, à une couche atomique près. Il est en particulier possible de réaliser un empilement de couches alternées de deux semiconducteurs d'indice optique différent et obtenir ainsi un miroir de Bragg, possédant une réflectivité très élevée. En déposant de chaque côté d'une couche d'épaisseur micrométrique, deux miroirs de Bragg, on obtient une cavité planaire de type Fabry-Pérot. Lorsque la cavité contient un ou plusieurs puits quantiques, l'émission des états électroniques confinés des puits est profondément modifiée par la présence de la cavité. En particulier, on peut obtenir un régime de *couplage fort* entre l'excitation électronique fondamentale des puits quantiques, l'exciton, et le mode confiné du champ électromagnétique. Il en résulte l'apparition de nouveaux états propres, les *polaritons de microcavité*, dont nous étudierons la dynamique cohérente.

Ce chapitre est une introduction aux polaritons de microcavité. Dans un premier temps, nous rappelons quelques notions sur les excitons de puits quantiques. Nous expliquons ensuite ce qu'est une microcavité de semiconducteurs. Puis nous nous intéressons à l'interaction entre les photons confinés par la microcavité et les excitons, et décrivons les polaritons de microcavité. En particulier, nous présentons la dispersion des polaritons, et quelques conséquences importantes des fortes modifications induites par le couplage fort.

1.1 Le puits quantique

1.1.1 États excitoniques

Par absorption d'un photon d'énergie supérieure à l'énergie de bande interdite E_g , un électron de la bande de valence peut être excité vers la bande de

conduction. Les états ainsi formés forment un continuum. En plus de la bande d'absorption au-delà de la bande interdite, l'absorption d'un semiconducteur présente d'étroites résonances sous l'énergie de bande interdite, qui ont été expliquées en introduisant la notion d'exciton [52]. Le problème d'un électron excité dans la bande de conduction, en interaction avec les $N - 1$ électrons restant dans la bande de valence est décrit avec une bonne approximation par un problème à deux corps. Les $N - 1$ électrons de la bande de valence forment une quasi particule, le trou, dont l'état correspond à l'électron manquant. Il possède une charge opposée à celle de l'électron, une masse effective différente, et est en interaction coulombienne avec l'électron de la bande de conduction. Le trou et l'électron constituent un dipôle identique à un système hydrogénoïde. Ce type d'excitation électronique, l'exciton, existe dans le massif, et aussi dans les puits quantiques, où le système est quasi bidimensionnel. Nous rappelons ci-dessous comment un puits quantique confine les électrons et les trous. Ensuite, nous décrivons le système hydrogénoïde bidimensionnel que forment ces électrons et trous confinés. Nous donnons enfin quelques rappels sur le couplage de l'exciton avec la lumière [53].

Confinement dans un puits quantique

Un puits quantique de semiconducteurs est formé d'une fine couche d'un semiconducteur insérée dans un autre semiconducteur d'énergie de bande interdite plus grande. Dans la direction de l'axe de croissance Oz , les extrema des bandes de conduction et de valence subissent des discontinuités au niveau des interfaces, créant un puits de potentiel aussi bien pour les trous que pour les électrons (cf. fig. 1.1). Lorsque la largeur de ce puits L_{QW} est de l'ordre de la longueur d'onde de de Broglie des porteurs, le puits crée un confinement des porteurs dans la direction Oz : le mouvement reste libre dans le plan des couches (perpendiculaire à l'axe Oz), le système est ainsi quasi bidimensionnel.

Le confinement quantifie les états de l'électron ou du trou (« hole » en anglais) dans la direction de l'axe de croissance, que l'on indice par un nombre quantique p . Les énergies de l'électron et du trou sont fonction du vecteur d'onde dans le plan des couches noté $\vec{k}_{//}$, et ont pour expression :

$$E^e(\vec{k}_{//}) = E_g + E_p^e + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_e}$$

$$E^h(\vec{k}_{//}) = -E_p^h - \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{2m_h}$$

où m_e et m_h sont les masses effectives de l'électron et du trou dans le plan des couches, et E_g l'énergie de bande interdite du matériau constituant le puits. $h = 2\pi\hbar$ est la constante de Plank.

Dans le cas d'un puits infini, $E_p^{e,h} = p^2 \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_{e,h} L_{\text{QW}}^2}$.

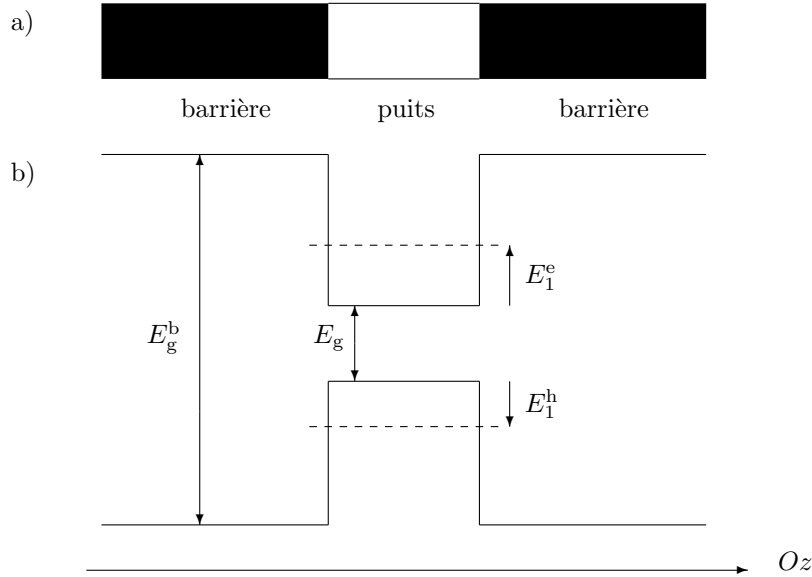


Fig. 1.1: a) Représentation schématique de la structure d'un puits quantique. b) Structure de bande du puits quantique. E_g^b est l'énergie de bande interdite de la barrière, E_g celle du puits. Les pointillés représentent les niveaux fondamentaux des électrons et des trous ($p = 1$), et E_1^e et E_1^h sont les énergies de confinement correspondantes.

Pour un puits de profondeur finie, les énergies $E_p^{e,h}$ n'ont pas d'expression analytique, mais sont du même ordre de grandeur.

La figure 1.1 représente un schéma des niveaux d'énergie dans la direction Oz .

L'exciton

Considérons un électron dans l'état p et un trou dans l'état q . Du fait de leurs charges opposées, il s'exerce une interaction coulombienne entre eux, qui agit comme une force attractive, égale à $e^2/4\pi\epsilon|r_e - r_h|$. L'exciton peut être décrit comme le système hydrogénoïde formé par ces deux particules en interaction coulombienne. L'exciton possède alors des états liés de type hydrogénoïde à deux dimensions. L'énergie de cet exciton, que l'on notera (p, q) , se sépare en deux termes :

- l'un correspond au mouvement du centre de masse, de vecteur d'onde $\vec{K}_{//} = \vec{k}_{//}^e - \vec{k}_{//}^h$ et de masse $M_{\text{exc}} = m_e + m_h$:

$$E_g + E_p^e + E_q^h + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{M_{\text{exc}}}$$

- l'autre correspond au mouvement interne et décrit les états du système

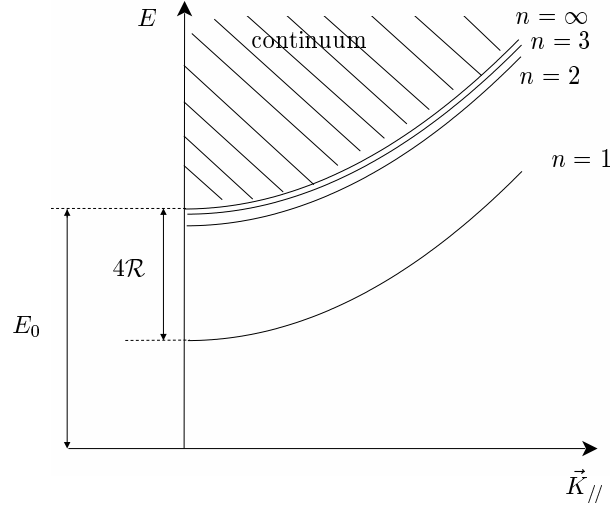


Fig. 1.2: Dispersion de l'exciton dans le plan des couches, en fonction du vecteur d'onde dans le plan $\vec{K}_{//} = \vec{k}_{//}^e - \vec{k}_{//}^h$. $E_0 = E_g + E_1^e + E_1^h$, et \mathcal{R} est le Rydberg effectif pour l'exciton.

hydrogénoïde à deux dimensions, indicés par le nombre quantique $n \in \mathbb{N}^*$:

$$E_n = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon} \frac{\mu}{2\hbar^2} \frac{1}{(n - \frac{1}{2})^2} = -\frac{\mathcal{R}}{(n - \frac{1}{2})^2}$$

où μ est la masse réduite qui vérifie $\mu^{-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$. \mathcal{R} est la constante de Rydberg effective. L'énergie de l'exciton (p, q) et de nombre quantique n est la somme de ces deux termes. L'extension spatiale de sa fonction d'onde est caractérisée par un rayon de Bohr égal à :

$$r^{2D} = a_H \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \frac{m_0}{\mu} \left(n - \frac{1}{2} \right)$$

où $a_H = 0,529 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène et m_0 la masse de l'électron libre. La figure 1.2 représente la dispersion de l'exciton à deux dimensions.

L'état de plus basse énergie pour l'exciton (p, q) est l'exciton 1s ($n = 1$). L'énergie interne est alors l'énergie de liaison qui vaut

$$E_l = 4\mathcal{R}$$

et le rayon de Bohr est

$$a_B^{2D} = \frac{\hbar^2 4\pi\epsilon}{\mu e^2} = \frac{1}{2} a_H \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \frac{m_0}{\mu} \quad (1.1)$$

Nous nous intéresserons à l'exciton qui absorbe le plus, c'est-à-dire l'exciton 1s correspondant au premier état confiné de l'électron et du trou : $(p, q) = (1, 1)$. Dans la plupart des semiconducteurs, il existe deux types de bandes de valence, celle des trous lourds (hh) et celles des trous légers (lh), qui est dégénérée en $\vec{k} = 0$. Mais dans un puits quantique, la discrétisation des états lève cette dégénérescence car les trous lourds et légers n'ont pas la même masse effective. On peut ainsi former deux types d'exciton 1s (1,1) : l'exciton lourd $(1, 1)_{hh}$ et l'exciton léger $(1, 1)_{lh}$. L'exciton lourd est celui qui a l'énergie totale la plus basse et nous verrons plus tard que dans nos échantillons, il est spectralement bien séparé des états excités. Aussi dorénavant ne tiendrons-nous compte que de cet exciton.

Finalement, l'énergie de l'exciton lourd 1s $(1, 1)_{hh}$ est

$$E(K_{//}) = E_g + E_1^e + E_1^h - E_l + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{M_{exc}} = E_{exc} + \frac{\hbar^2 K_{//}^2}{M_{exc}} \quad (1.2)$$

1.1.2 Couplage avec le champ

Un exciton peut être créé par absorption d'un photon. Inversement, l'exciton peut émettre un photon en se désexcitant lors de la recombinaison de l'électron et du trou. L'hamiltonien de couplage exciton-photon, dans l'approximation dipolaire électrique, vaut $\mathcal{H} = -\frac{e}{m_0} \vec{A} \cdot \vec{p}$ où \vec{A} est le potentiel vecteur et \vec{p} l'opérateur impulsion. La probabilité d'absorption d'un photon est proportionnelle à l'élément de matrice $\langle \vec{K} | \vec{p} \cdot \vec{A} | 0 \rangle$ où $|0\rangle$ est l'état fondamental (cristal dans l'état fondamental et un photon) et $|\vec{K}\rangle$ l'état excitonique. Il en découle, dans le cas de puits quantiques, les règles de sélection suivantes.

- Moments angulaires :

Le trou lourd a un moment angulaire total $J = 3/2$. En effet, la bande de valence provient d'états électroniques de type p. L'électron ayant un spin $1/2$, l'exciton peut avoir un moment égal à $J = 2$ et $J = 1$. Comme l'état fondamental possède un moment angulaire nul et que le photon apporte une projection du moment angulaire valant 1 ou -1 , les états $J = 2$ ne sont pas couplés à la lumière. Ils sont appelés pour cette raison états noirs. Le couplage dipolaire ne permet de se coupler qu'aux états $J = 1$, $M_j = \pm 1$. Ceux-ci peuvent émettre ou absorber des photons de polarisation circulaire σ_+ ou σ_- .

- Vecteur d'onde

Un exciton de vecteur d'onde $\vec{K}_{//}$ est uniquement couplé à un photon de même vecteur d'onde $\vec{k}_{//}$ dans le plan (invariance par translation dans le plan des couches) :

$$\vec{K}_{//} = \vec{k}_{//} \quad (1.3)$$

La valeur de la composante selon z du vecteur d'onde du photon peut prendre *a priori* n'importe quelle valeur. Cette propriété est associée à la brisure de l'invariance par translation selon l'axe de croissance.

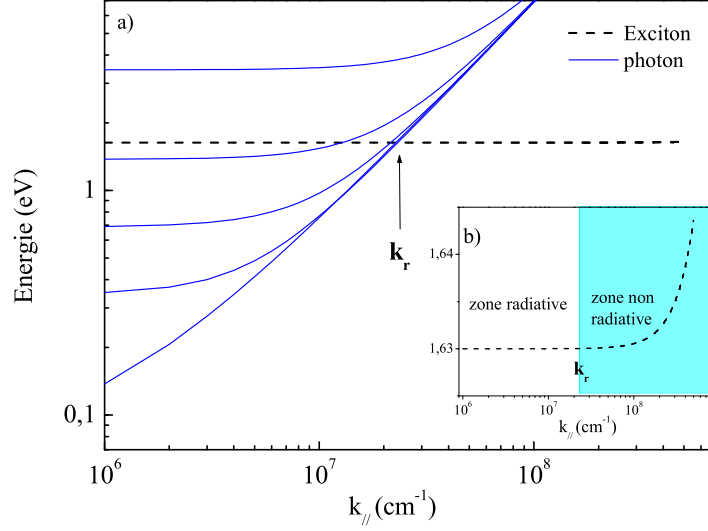


Fig. 1.3: Dispersion de l'exciton d'un puits quantique (ici celui de nos échantillons, cf. § 3.1.1) dans le plan des couches et du photon pour plusieurs valeurs de k_z (de haut en bas, $k_z = 0/5.10^6/1.10^7/2.10^7/5.10^7 \text{ cm}^{-1}$). k_r est le vecteur d'onde limite au-delà duquel les excitons ne sont plus couplés à la lumière. La figure b) montre la dispersion parabolique de l'exciton sur une autre échelle, et les zones radiatives et non-radiatives.

- Conservation de l'énergie

L'absorption ou l'émission d'un photon par l'exciton conserve l'énergie. L'énergie d'un photon qui se propage dans le matériau du puits d'indice n est $\hbar ck/n$. En tenant compte de la condition 1.3 sur les vecteurs d'ondes, on a (d'après 1.2) :

$$E_{\text{exc}} + \frac{\hbar^2 k_{//}^2}{M_{\text{exc}}} = \hbar \frac{c}{n} \sqrt{k_{//}^2 + k_z^2}$$

La figure 1.3 montre la dispersion de l'exciton et celle du photon pour plusieurs valeurs de k_z : les deux courbes ne se coupent que lorsque $k_z < k_r = nE_{\text{exc}}/\hbar c$. D'où l'existence d'une zone radiative de l'exciton, définie par $K_{//} < k_r$.

De plus, on voit que l'exciton est couplé à un continuum de modes du champ (les photons de vecteur d'onde dans le plan fixé égal à celui de l'exciton, mais de composante $k_z \in [0, k_r]$), dont la densité d'état est [54] :

$$\rho(\vec{k}_{//}, E) = \sum_{k_z} \delta\left(E - \hbar \frac{c}{n} \sqrt{k_{//}^2 + k_z^2}\right) \propto \frac{k_r}{\sqrt{k_{//}^2 + k_r^2}} \theta(k_r - k_{//})$$

où θ est la fonction d'Heaviside. Dans cette situation, la probabilité que l'exciton soit dans son état excité décroît exponentiellement au cours du temps, avec une

constante de temps T_1 donnée par la règle d'or de Fermi [55]. C'est une situation de *couplage faible*.

La force du couplage est caractérisée par la force d'oscillateur par unité de surface, définie par :

$$f = \frac{2}{m_0 E_{\text{exc}}} \frac{|\langle \vec{0} | \vec{\epsilon} \cdot \vec{p} | \vec{K} \rangle|^2}{S}$$

où $\vec{\epsilon}$ est la polarisation du champ. L'exciton peut être vu comme un oscillateur de Lorentz, avec la constante diélectrique égale à :

$$\epsilon_{\text{exc}} = \epsilon_{\infty} + \frac{e^2 \hbar^2 f}{\epsilon_0 m_0 L_{\text{QW}}} \frac{1}{E_{\text{exc}}^2 - E^2 - i\gamma E} \quad (1.4)$$

où γ représente la largeur homogène de l'exciton, qui est ici phénoménologique.

1.1.3 Saturation avec la densité de porteurs

Lorsque la densité d'excitons devient très importante, la transition excitonique s'affaiblit, et finit par disparaître [56, 57, 58]. La principale raison est qu'un exciton est construit sur un grand nombre d'états de fermions, les trous et les électrons. À cause du remplissage de l'espace des phases, lorsque la densité est importante, les états des trous et des électrons se remplissent et ne sont plus disponibles pour construire l'état d'exciton. D'autre part, la présence d'autre paires électron-trou modifie l'interaction électron-trou de l'exciton ; ce dernier processus inclut des effets d'échange, et un écrantage de l'interaction coulombienne liant le trou et l'électron (cet écrantage est faible dans le cas bidimensionnel). Aussi, la saturation de l'exciton due au remplissage de l'espace des phases et aux effets d'échange, mécanismes liés au principe d'exclusion, intervient à une densité de porteurs égale à [57] :

$$n_{\text{sat}} = 0,117/\pi(a_B^{2\text{D}})^2 \quad (1.5)$$

À faible densité de porteurs, c'est-à-dire loin de la saturation, l'exciton, constitué de deux fermions, peut être considéré comme un quasi-boson. En désignant par $\beta_{\mathbf{K}}^{\dagger}$ l'opérateur création d'exciton, le commutateur $[\beta_{\mathbf{K}}, \beta_{\mathbf{K}}^{\dagger}]$ doit être égal à un pour des bosons. On montre que la moyenne de ce commutateur sur un état à n électrons vaut environ $1 - O(n a_B^{2\text{D}})$ (pour une discussion à ce sujet, on se pourra se reporter à la réf. [49]).

1.2 Microcavité de semiconducteurs

1.2.1 Rappels sur la cavité Fabry-Pérot

Un grand nombre des propriétés des microcavités de semiconducteurs se décrivent bien à partir d'un modèle de cavité Fabry-Pérot dont nous rappelons ici

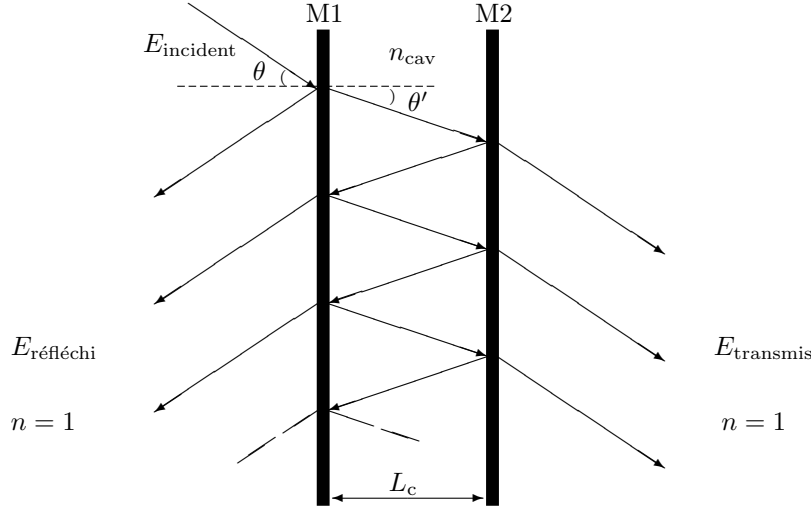


Fig. 1.4: Principe du Fabry-Pérot

quelques propriétés importantes (voir par exemple [59]).

Une cavité Fabry-Pérot est composée de deux miroirs séparés d'un milieu d'indice n_{cav} , et de largeur L_{cav} . Soit r_1 et r_2 les coefficients de réflectivité des miroirs, et t_1 et t_2 les coefficients de transmission. Le schéma de principe est donné sur la figure 1.4. Un champ électromagnétique incident sur le miroir M1 fait des allers-retours dans la cavité, donnant naissance à un champ réfléchi et un champ transmis qui résultent d'interférences multiples.

Lorsque le champ incident est une onde plane de longueur d'onde λ , le champ transmis est égal à (à une constante de phase près) :

$$E_{\text{transmis}} = E_{\text{incident}} \frac{t_1 t_2}{1 - r_1 r_2 e^{i\phi}}$$

avec $\phi = \frac{4\pi n_{cav} L_{cav} \cos \theta'}{\lambda}$, la différence de phase entre deux ondes successives réfléchies ou transmises. L'angle θ' est lié à l'angle d'incidence θ par la loi de Snell-Descartes.

La transmission de l'intensité par le Fabry-Pérot est donnée par :

$$T = \left| \frac{E_{\text{transmis}}}{E_{\text{incident}}} \right|^2 = \frac{(t_1 t_2)^2}{(1 - r_1 r_2)^2} \frac{1}{1 + \frac{4r_1 r_2}{(1 - r_1 r_2)^2} \sin^2 \frac{\phi}{2}}$$

On n'a pas introduit de pertes, donc $|r_i|^2 + |t_i|^2 = 1$ et la réflectivité en intensité est donnée par $R = 1 - T$. Celle-ci est tracée pour $r_1 = 0,8$ et $r_2 = 0,9$ sur la figure 1.5.

Le Fabry-Pérot réalise ainsi une sélection des modes du champ : seuls ces modes sont transmis et donnent lieu à des creux en réflectivité. Ces résonances

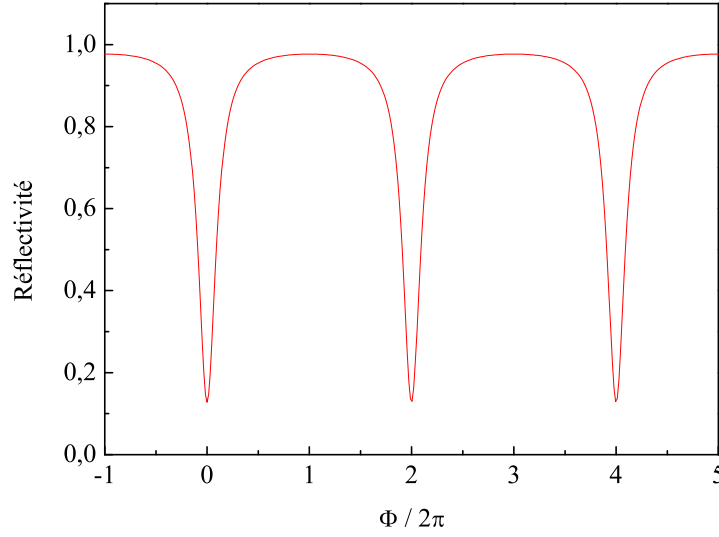


Fig. 1.5: Réflectivité d'un Fabry-Pérot pour $r_1 = 0,8$ et $r_2 = 0,9$.

apparaissent pour $\phi = 2p\pi, p \in \mathbb{N}$, c'est-à-dire, en terme de longueur d'onde,

$$2n_{\text{cav}}L_{\text{cav}} \cos \theta' = p \lambda$$

La largeur à mi-hauteur en énergie d'un mode est :

$$\gamma_c = \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}L_{\text{cav}} \cos \theta'} \frac{1 - r_1 r_2}{\sqrt{r_1 r_2}}$$

et la séparation entre deux modes vaut :

$$\Delta E = \frac{\hbar c}{2n_{\text{cav}}L_{\text{cav}} \cos \theta'}$$

La finesse de la cavité est alors définie par $\gamma_c/\Delta E$ et vaut $\pi \frac{\sqrt{r_1 r_2}}{1 - r_1 r_2}$. Pour obtenir de grandes finesesses, les coefficients de réflectivité doivent être proches de l'unité. De plus, la transmission est maximale lorsque ces coefficients sont égaux.

Enfin, considérons la relation de dispersion des modes optiques. Le vecteur d'onde intracavité s'écrit $\vec{k} = \vec{k}_{//} + \vec{k}_z$, de module $2\pi n_{\text{cav}}/\lambda$, avec λ vérifiant la condition de résonance. La composante perpendiculaire au Fabry-Pérot est quantifiée : $k_z = p \pi/L_{\text{cav}}$. L'énergie du mode p s'écrit alors :

$$E = \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}} \sqrt{k_{//}^2 + \left(\frac{p \pi}{L_{\text{cav}}}\right)^2}$$

À petit vecteur d'onde $\vec{k}_{//}$ la dispersion peut être approchée par une parabole et on peut définir une masse effective du photon en cavité M_{ph} :

$$E \approx \frac{\hbar c p \pi}{n_{\text{cav}}L_{\text{cav}}} + \frac{\hbar^2 k^2}{2M_{\text{ph}}}$$

On trouve une masse effective pour le photon $M_{\text{ph}} = \frac{\hbar n_{\text{cav}} p \pi}{c L_{\text{cav}}}$.

1.2.2 Miroir de Bragg

Les miroirs de Bragg à base de semiconducteurs sont constitués d'un empilement périodique de deux couches de semiconducteurs, d'épaisseur optique $\lambda_0/4$ et d'indice n_1 et n_2 ($n_1 > n_2$) (cf. schéma de la fig. 1.6). Le principe de fonctionnement est le même que celui des miroirs diélectriques multicouches. Un champ électromagnétique de longueur d'onde voisine de λ_0 subit des interférences destructives en transmission et constructives en réflexion. La réflectivité est alors très grande sur une bande spectrale appelée « bande d'arrêt » (« stop band » en anglais). Celle-ci est centrée sur la longueur d'onde λ_0 , et sa largeur $\Delta\lambda$ est proportionnelle à la différence d'indice $\Delta n = n_1 - n_2$ lorsque le nombre de couches est grand [60] :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} = \frac{4}{\pi} \arcsin\left(\frac{\Delta n}{n_1 + n_2}\right) \approx \frac{2\Delta n}{\pi n} \quad (1.6)$$

Nous calculons le champ en un point à l'intérieur de cette structure tout comme les champs réfléchis et transmis, en utilisant la méthode des matrices de transfert [59, 61]. Les relations de passage du champ à chaque interface sont prises en compte sous forme matricielle. Dans le cas des microcavités, cela a été plus particulièrement développé dans les références [62] et [63]. La figure 1.6 montre la réflectivité ainsi calculée correspondant à un miroir de Bragg d'un de nos échantillons.

La réflectivité est très importante dans la bande d'arrêt, et oscille fortement en-dehors. On peut l'estimer autour de λ_0 en incidence normale [62]. En notant n_d l'indice du milieu d'où vient la lumière (ici, l'extérieur, constitué de l'air), et n_g celui du milieu de l'autre côté du miroir (constitué du substrat) :

$$R = 1 - 4 \frac{n_d}{n_g} \left(\frac{n_2}{n_1}\right)^{2N}$$

avec N le nombre de paires de couches. Au niveau de la bande d'arrêt, la réflectivité est de 99,5% pour $N = 23$ et pour un indice du substrat de 3.

Il y a également un déphasage à la réflexion qui vaut $\frac{n_d L_{\text{DBR}}}{\hbar c} (E - E_0)$ où

$$L_{\text{DBR}} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_d (n_1 - n_2)} \quad (1.7)$$

représente une longueur de pénétration dans le miroir du champ électrique. En effet, le champ pénètre à l'intérieur du miroir de Bragg, contrairement à un miroir métallique.

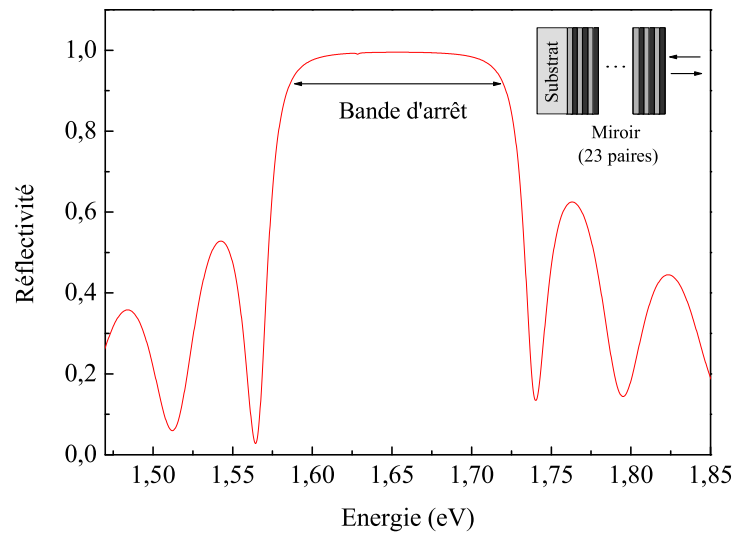


Fig. 1.6: Réflectivité d'un miroir de Bragg constitué de 23 paires de couches $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ / $\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$ (miroir de l'échantillon M1159, qui sera décrit au chapitre 3), calculée par la méthode des matrices de transfert. La structure du miroir est représentée schématiquement en haut à droite.

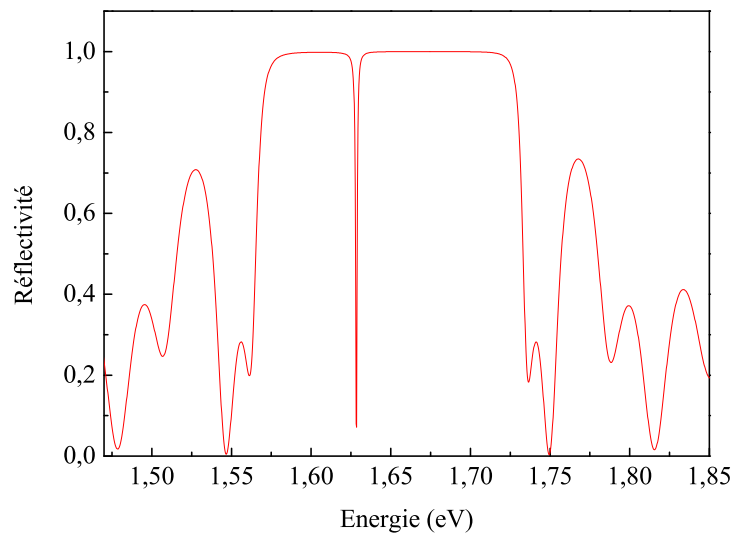


Fig. 1.7: Réflectivité de la microcavité M1159, calculée par la méthode des matrices de transfert.

1.2.3 Microcavité de semiconducteurs

Une microcavité de semiconducteurs est constituée de deux miroirs de Bragg enserrant une cavité. C'est une « micro » cavité car l'épaisseur de la cavité est de l'ordre de la longueur d'onde, plus précisément un multiple de $\lambda_0/2$. Elle se comporte alors comme une cavité Fabry-Pérot dans la gamme spectrale où les miroirs de Bragg sont réfléchissants. À l'aide de la méthode numérique des matrices de transfert, nous calculons la réflectivité tout en tenant compte de la structure réelle de la microcavité (cf. fig. 1.7). Il s'agit d'une cavité 2λ dont la structure exacte sera détaillée dans le chapitre 3. À l'intérieur de la bande d'arrêt des miroirs de Bragg, apparaît un pic de réflectivité (à 1,63 meV) : il définit le mode de la cavité, à la longueur d'onde λ_{cav} , voisine de la longueur d'onde de résonance des miroirs λ_0 . La largeur de la cavité étant petite, les modes du Fabry-Pérot sont spectralement éloignés les uns des autres, si bien qu'un seul mode, correspondant à une des premières résonances, se trouve dans la bande d'arrêt.

Le champ à l'intérieur de la structure peut être calculé par le calcul matriciel. La figure 1.8 montre le module de l'amplitude du champ électrique à la lon-

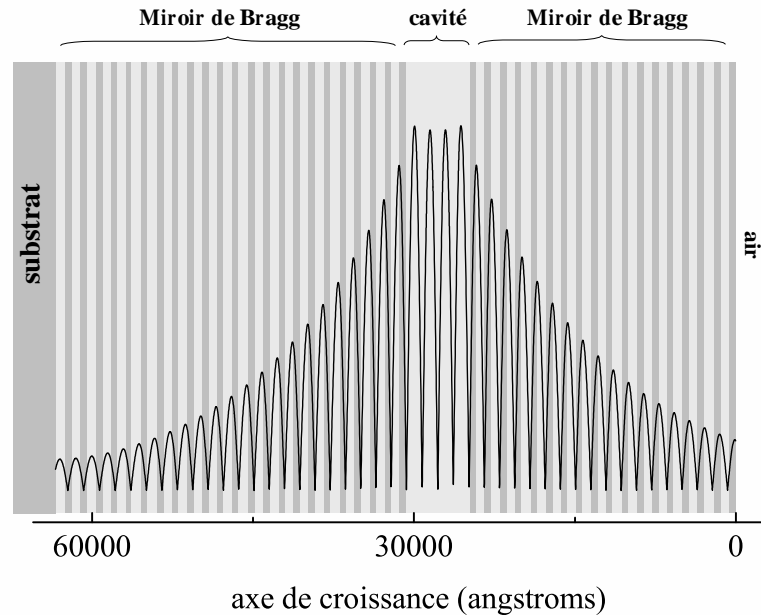


Fig. 1.8: Valeur absolue de l'amplitude du champ électrique le long de la microcavité M1159 (cavité 2λ), dont la structure est représentée schématiquement : le miroir avant (en contact avec l'air) contient 17,5 paires de couches d'indice n_1 et n_2 , et le miroir arrière, 23 paires (cf. description chap. 3).

gueur d'onde de résonance de la cavité, qui correspondra à l'énergie de l'exciton. Le champ a une amplitude maximale à l'intérieur de la cavité, et possède deux ventres dans cette cavité 2λ (donc quatre maxima pour le module de l'amplitude du champ) ; l'amplitude oscille ensuite avec une enveloppe décroissante dans les miroirs de Bragg.

Il est possible de montrer que la microcavité est équivalente à un Fabry-Pérot classique, à condition de tenir compte de cette pénétration du champ dans les miroirs et du déphasage à la réflexion des miroirs. La longueur effective de la cavité à prendre en compte est $L_{\text{eff}} = L_{\text{cav}} + L_{\text{DBR}}$, où L_{cav} est la largeur de la cavité et L_{DBR} est donnée par l'équation 1.7, l'indice n_d étant maintenant l'indice n_c du matériau constituant la cavité. Les miroirs seraient des miroirs métalliques sans épaisseur avec des coefficients de réflexion en amplitude r_1 (miroir en contact de l'air) et r_2 (miroir déposé sur le substrat). Ces coefficients ont les valeurs suivantes, en incidence normale et lorsque les miroirs sont vus de l'intérieur de la cavité :

$$|r_1|^2 = 1 - 4 \frac{n_{\text{ext}}}{n_c} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N_1} \quad (1.8)$$

$$|r_2|^2 = 1 - 4 \frac{n_c}{n_{\text{substrat}}} \left(\frac{n_2}{n_1} \right)^{2N_2} \quad (1.9)$$

où N_1 (resp. N_2) est le nombre de paires de couches du miroir au contact de l'air (resp. du miroir déposé sur le substrat). L'ensemble de la microcavité est alors considéré comme un milieu d'indice effectif n_{cav} (cf. fig. 1.9). La largeur à mi-hauteur du mode en incidence normale est donc celle d'un Fabry-Pérot de largeur L_{eff} :

$$\gamma_{\text{cav}} = \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}} L_{\text{eff}}} \frac{1 - |r_1 r_2|}{\sqrt{|r_1 r_2|}} \quad (1.10)$$

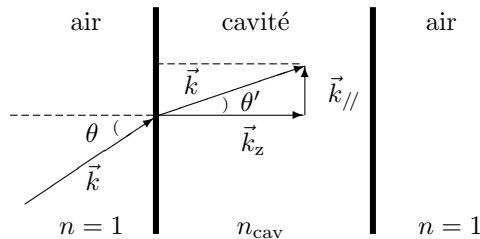


Fig. 1.9: Représentation schématique de la microcavité, considérée comme un milieu effectif d'indice n_{cav} . Est également représentée une onde incidente de vecteur d'onde \vec{k} et d'angle d'incidence θ .

Angles particuliers

Quel que soit l'angle d'incidence, le vecteur d'onde selon l'axe de croissance z reste quantifié :

$$k_z = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{\lambda_{\text{cav}}}$$

où λ_{cav} est la longueur d'onde de la résonance en incidence nulle. En revanche, la composante dans le plan des couches dépend de l'angle d'incidence, donc de l'angle intérieur θ' . La relation entre $k_{//}$ et l'angle intérieur est (cf. fig. 1.9) :

$$k_{//} = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{\lambda_{\text{cav}}} \tan \theta' \quad (1.11)$$

Pour un angle d'incidence donné, la résonance correspond à la longueur d'onde λ_θ telle que

$$\lambda_\theta = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{k} = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{k_z \sqrt{1 + \tan^2 \theta'}} = \lambda_{\text{cav}} \cos \theta'$$

La résonance se déplace donc avec l'angle d'incidence. En fait, c'est l'ensemble de la courbe de réflectivité qui se déplace. Or nous avons vu qu'en-dehors de la bande d'arrêt des miroirs, la réflectivité oscille et il existe des creux de réflectivité. Il se peut alors, lorsque l'angle d'incidence est suffisamment grand, que le mode de cavité sorte de la bande d'arrêt et coïncide avec un des premiers creux de réflectivité. Il s'agit d'un mode de fuite, où les photons ne sont plus confinés, les miroirs de Bragg n'étant plus réfléchissants. On peut estimer l'angle intérieur θ'_f à partir duquel les modes de fuites apparaissent, à l'aide de la valeur de la bande d'arrêt des miroirs :

$$\cos \theta'_f = 1 - \frac{2}{\pi} \arcsin \left(\frac{n_1 - n_2}{n_1 + n_2} \right) \quad (1.12)$$

D'autre part, il existe des modes guidés, lorsque l'angle intérieur θ' est supérieur à l'angle limite de réflexion totale θ'_l tel que $n_{\text{cav}} \sin \theta'_l = 1$. L'onde reste piégée à l'intérieur de la cavité et ne peut sortir qu'au bord latéral de l'échantillon.

Relation de dispersion

Comme pour le Fabry-Pérot classique, on peut écrire une relation de dispersion pour la microcavité, dans le cadre du modèle « effectif », qui traduit comme on vient de le voir le déplacement de la résonance avec l'angle d'incidence. Pour une longueur d'onde λ_{cav} de résonance (dans le vide) en incidence normale, l'énergie du mode de la cavité en fonction du vecteur d'onde dans le plan intracavité a pour expression :

$$E = \frac{\hbar c}{n_{\text{cav}}} \sqrt{k_{//}^2 + \left(\frac{2\pi n_{\text{cav}}}{\lambda_{\text{cav}}} \right)^2} \quad (1.13)$$

On peut de même définir une masse effective pour le photon :

$$M_{\text{ph}} = \frac{hn_{\text{cav}}^2}{\lambda_{\text{cav}}c} \quad (1.14)$$

Par exemple, dans le cas de nos échantillons, $M_{\text{ph}} \approx 3.10^{-5} m_0$.

1.3 Puits quantiques en cavité

Nous allons maintenant décrire comment est modifié le couplage des excitons avec le champ lorsque le puits quantique est inséré à l'intérieur de la microcavité. Pour ce faire, on fait croître sur un substrat, par dépôt de couches successives et en une seule opération, un miroir de Bragg, la cavité avec un ou plusieurs puits quantiques, puis le second miroir. Les puits sont placés en général aux ventres du champ, où l'amplitude du champ électrique est la plus grande, afin d'obtenir un plus grand couplage.

1.3.1 Couplage fort

Nous avons vu au § 1.1.2 qu'un puits nu était en *couplage faible* avec le champ : l'état excitonique est couplé avec un continuum de modes du champ, et il se désexcite avec un temps de déclin donné par la règle d'or de Fermi (cf. fig. 1.10 a).

La situation est tout autre pour un puits en cavité. Les règles de sélection sont les mêmes, en particulier, l'exciton de vecteur d'onde dans le plan $\vec{K}_{//}$ ne se couple qu'aux photons de même vecteur d'onde dans le plan. Mais la cavité

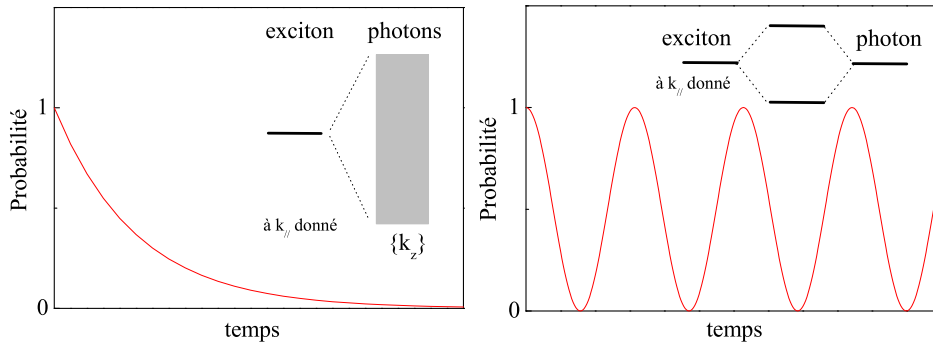


Fig. 1.10: a) Couplage faible. L'exciton se désexcite irréversiblement, et la probabilité de se trouver dans cet état décroît exponentiellement. b) Couplage fort. La probabilité d'être dans l'état excitonique oscille au cours du temps.

impose une quantification du vecteur \vec{k}_z du photon :

$$k_z = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{\lambda_{\text{cav}}}$$

Il n'existe alors qu'un mode de photon de vecteur d'onde dans le plan égal à $\vec{K}_{//}$. Aussi l'état excitonique de vecteur d'onde $\vec{K}_{//}$ est couplé avec un mode unique du champ : on peut ainsi obtenir un *couplage fort* entre deux états discrets. Il y a apparition de nouveaux états propres, les polaritons de microcavité ; l'exciton n'est plus un état propre du système.

Si le système est préparé dans l'état excitonique, l'évolution temporelle présente des oscillations de Rabi [55] (cf. fig. 1.10 b).

1.3.2 Énergies propres et polaritons

Le couplage fort est bien modélisé par un traitement semi-classique, fondé sur la modélisation semi-classique de l'interaction du puits avec le champ et utilisant la méthode des matrices de transfert [62, 63]. Il donne les mêmes résultats qu'un traitement quantique complet. Il montre que près de la résonance, le couplage de l'exciton et du photon peut être décrit par un système de deux oscillateurs harmoniques amortis couplés, de constante de couplage V . Les amortissements sont dus à la largeur spectrale du mode de la cavité (éq. 1.10) et à celle de l'exciton γ_x . Lorsque les miroirs sont très réfléchissants ($r_1 r_2 \approx 1$), V est égal à :

$$V = \sqrt{\frac{2fe^2}{n_{\text{cav}}^2(L_{\text{Bragg}} + L_{\text{cav}})m_0\epsilon_0}}$$

On peut montrer que lorsqu'il y a N puits dans la cavité, $V \propto \sqrt{N}$.

Les énergies propres complexes ont alors pour expression ;

$$E_{\pm} = \frac{E_{\text{exc}} + E_{\text{cav}} - i(\gamma_{\text{cav}} + \gamma_x)}{2} \pm \frac{\Delta}{2} \quad (1.15)$$

avec

$$\Delta = \sqrt{(\delta - i(\gamma_{\text{exc}} - \gamma_{\text{cav}}))^2 + 4V^2}$$

où le désaccord exciton-photon est défini par $\delta = E_{\text{cav}} - E_{\text{exc}}$. La partie réelle de ces expressions donnent l'énergie des modes propres, et la partie imaginaire, la largeur des modes. Les niveaux d'énergies présentent un anticroisement caractéristique du couplage fort. En effet, lorsque le désaccord varie, il y a levée de dégénérescence autour de la résonance. Cette courbe d'anticroisement est représentée sur la figure 1.11, à l'aide de l'expression des énergies (éq. 1.15). La différence

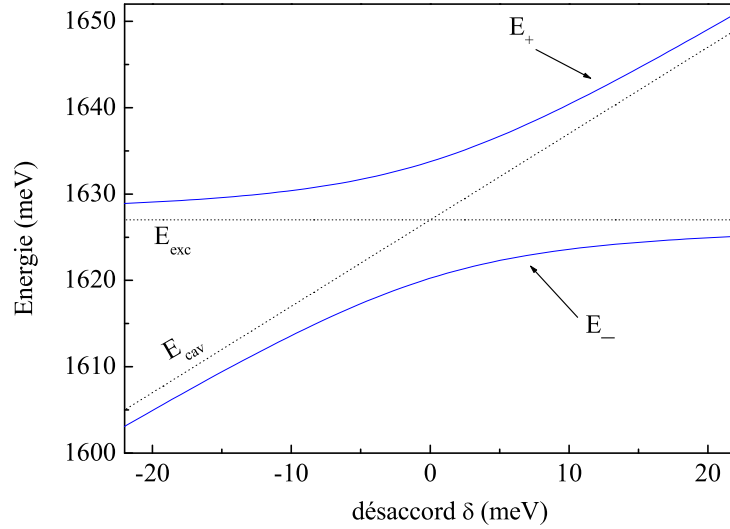


Fig. 1.11: Courbe d'anticroisement : énergies des deux polaritons en fonction du désaccord, lorsque l'énergie de l'exciton E_{exc} est constante et celle de la cavité E_{cav} varie. Au voisinage de la résonance ($E_{exc} = E_{cav}$), il y a levée de dégénérescence. À la résonance, les énergies des polaritons sont séparées de la quantité $\hbar\Omega$, dédoublement de Rabi.

d'énergie minimale entre les deux modes, obtenue à la résonance, correspond au dédoublement de Rabi $\hbar\Omega$:

$$\hbar\Omega = 2\sqrt{V^2 - \frac{1}{4}(\gamma_{exc} - \gamma_{cav})^2}$$

Les modes propres sont une combinaison linéaire des états de photons et d'excitons : ce sont les polaritons de microcavité. En notant l'état de photon $|cav\rangle$ et l'état excitonique $|X\rangle$, les états de polariton basse énergie $|PB\rangle$ et haute énergie $|PH\rangle$ s'écrivent :

$$|PB\rangle = X |X\rangle - C |cav\rangle$$

$$|PH\rangle = C |X\rangle + X |cav\rangle$$

X et C sont les coefficients de Hopfield :

$$X = \frac{2V}{\sqrt{4V^2 + (\delta + \Delta)^2}} \quad (1.16)$$

$$C = \frac{\delta + \Delta}{\sqrt{4V^2 + (\delta + \Delta)^2}} \quad (1.17)$$

Pour le polariton de basse énergie, par exemple, $|X|^2$ et $|C|^2$ représentent respectivement la partie excitonique et la partie photonique de ce polariton. Notons qu'à la résonance, les polaritons sont moitié exciton, moitié photon, et que ce modèle d'oscillateurs couplés prévoit que leur largeurs sont les mêmes, égales à $(\gamma_{\text{exc}} + \gamma_{\text{cav}})/2$.

On montre que la séparation des pics de résonance en transmission, absorption, réflexion ou photoluminescence diffère et n'est pas exactement égale au dédoublement de Rabi $\hbar\Omega$ [62, 63]. Cependant, pour des valeurs de $\hbar\Omega$ grandes

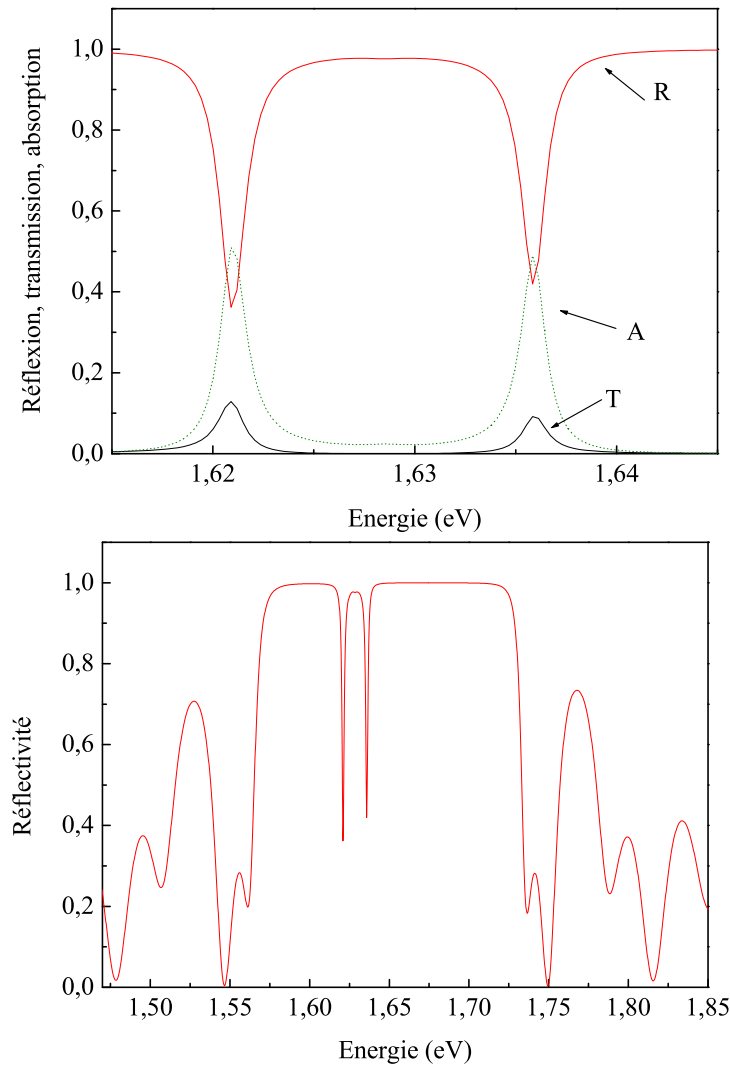


Fig. 1.12: Réflectivité (R), absorption (A) et transmission (T) calculées par la méthode des matrices de transfert pour l'échantillon M1159. La figure du bas montre la réflectivité sur une large échelle.

devant celles des largeurs γ_{exc} et γ_{cav} , toutes ces valeurs sont presque égales et c'est ce que nous considérerons.

Dans notre travail, nous avons utilisé suivant les besoins, le modèle d'oscillateurs couplés décrit ci-dessus (pour le calcul des dispersions par exemple), ou bien la méthode numérique des matrices de transfert (pour le calcul des spectres de réflectivité par exemple). Dans ce dernier cas, les différentes couches de la cavité et des miroirs sont décrites par leur épaisseur et leur indice optique. Quant aux puits, l'absorption excitonique est modélisée par une constante diélectrique dispersive, qui a la forme d'un oscillateur de Lorentz, et qui est caractérisée par une force d'oscillateur f et sa largeur spectrale γ_x (cf. éq. 1.4). La figure 1.12 présente ainsi la réflexion, l'absorption et la transmission pour un de nos échantillons à désaccord nul en incidence normale.

Il est important de noter que la levée de dégénérescence entre l'exciton et le mode de la cavité, et donc l'existence de deux valeurs propres distinctes dépend des valeurs relatives des largeurs de raie et du couplage. À la résonance, c'est-à-dire $\delta = 0$, il faut que $|\gamma_{\text{exc}} - \gamma_{\text{cav}}| < 2V$. Ainsi un élargissement des raies ou une diminution de la force de couplage peut aboutir à la disparition du couplage fort, et au passage au régime de couplage faible. On peut ainsi passer continûment du régime de couplage fort au régime de couplage faible, en augmentant la densité de porteurs par une excitation optique, du fait de l'élargissement de la transition excitonique avec la puissance d'excitation (cf. § 2.3.1) [64].

1.3.3 Relation de dispersion

La dispersion des polaritons se calcule d'après les dispersions du photon (éq 1.13) et de l'exciton (éq 1.2). On a alors :

$$E_{\pm}(k_{//}) = \frac{E_{\text{exc}}(k_{//}) + E_{\text{cav}}(k_{//})}{2} \pm \frac{\sqrt{(E_{\text{exc}}(k_{//}) - E_{\text{cav}}(k_{//}))^2 + 4V^2}}{2} \quad (1.18)$$

Le désaccord est défini à $k_{//} = 0$, c'est-à-dire que $\delta = E_{\text{cav}}(0) - E_{\text{exc}}(0)$. Les dispersions du polariton de basse énergie et de haute énergie sont tracées sur la fig. 1.13 pour trois désaccords, $\delta = 0$, $\delta < 0$ et $\delta > 0$. On a également tracé dans chaque cas les fractions excitoniques et photoniques de la branche basse.

Pour $\delta = 0$, l'anticroisement se produit en $k_{//} = 0$; pour $\delta < 0$, il se produit à un vecteur d'onde positif, et la dispersion du polariton de basse énergie est plus creusée autour de $k_{//} = 0$; enfin, pour $\delta > 0$, l'écart des énergies est plus grand. La dispersion du polariton de basse énergie présente une région où la pente $dE/dk_{//}$ est importante : cela crée un goulot d'étranglement pour la relaxation des polaritons.

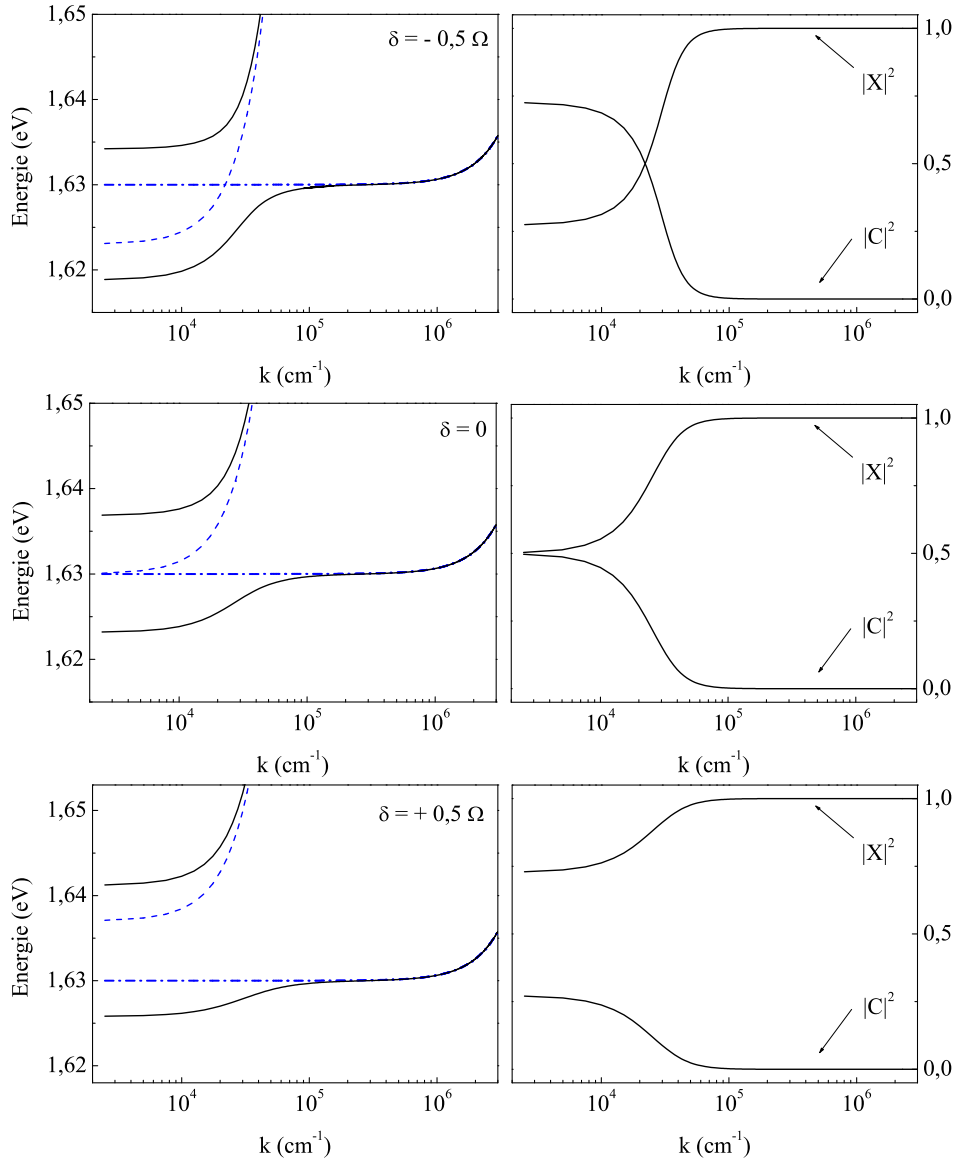


Fig. 1.13: Dispersion des polaritons (colonne de gauche) et fraction excitonique $|X|^2$ et photonique $|C|^2$ du polariton de basse énergie (colonne de droite) pour trois désaccords différents (de haut en bas : $\delta = -\hbar\Omega/2$, 0 , $\hbar\Omega/2$, où $\hbar\Omega$ est le dédoublement de Rabi). Sont également représentées la dispersion de l'exciton (trait mixte) et celle du mode de cavité (pointillés).

La dispersion de l'exciton nu est fortement modifiée, en particulier lorsque le désaccord est nul ou négatif. En centre de zone, les dispersions des polaritons sont paraboliques et se rapprochent de la dispersion du photon. On peut alors définir une masse effective pour le polariton. Avec les paramètres de notre cavité, le po-

lariton du bas a une masse effective de $5.10^{-5} m_0$ en $\delta = 0$, c'est-à-dire $6,5.10^{-5}$ fois moins que la masse de l'exciton. La densité d'état est donc aussi très diminuée.

Le poids exciton et photon des polaritons varie lorsque le vecteur d'onde augmente, et si les largeurs de la cavité et celle de l'exciton sont différentes, la largeur spectrale des polaritons va également varier. Pour le polariton de basse énergie par exemple, la fraction excitonique croît avec le vecteur d'onde. À désaccord nul, en $k_{//} = 0$, nous avons vu que la largeur du polariton est la moyenne des largeurs de l'exciton et du photon. À grand vecteur d'onde, elle est dominée par celle de l'exciton.

À partir d'un vecteur d'onde assez grand, le polariton de basse énergie a une fraction photonique négligeable. Par exemple, pour un désaccord nul, la fraction excitonique est de plus de 90 % pour un vecteur d'onde supérieur à $3,5.10^4 \text{ cm}^{-1}$. La dispersion est plate et très proche de celle de l'exciton pour ces grands vecteurs d'onde. Cette région est appelée réservoir excitonique : la densité d'état de ces états quasi excitoniques est très grande. Nous verrons qu'elle interviendra dans notre étude de l'élargissement collisionnel (chap. 5).

Il est possible de sonder la dispersion en changeant l'angle d'incidence d'excitation ou de détection [16]. En effet, nous avons vu au § 1.2.3 que le vecteur d'onde dans le plan $k_{//}$ vérifiait $k_{//} = \frac{2\pi n_{\text{cav}}}{\lambda_{\text{cav}}} \tan \theta'$ où θ' est l'angle intérieur lié par les lois de Snell-Descartes à l'angle extérieur.

1.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons rappelé les propriétés optiques des cavités de semiconducteurs et des puits quantiques afin de décrire l'interaction entre l'exciton du puits en cavité et le mode de la cavité. Le couplage fort qui peut en résulter, si les amortissements sont plus petits que le couplage, donne naissance à deux nouveaux états propres, les polaritons de microcavité. Nous avons montré que la dispersion des polaritons était très différente de celle de l'exciton, et que cela conduisait à une forte modification des masses effectives, et donc de la densité d'état. On s'attend alors à ce que la dynamique de la cohérence soit modifiée. C'est ce que nous allons étudier par une technique de mélange à quatre ondes.

Chapitre 2

Mélange à quatre ondes

L'excitation cohérente d'un matériau par une impulsion laser ultra courte crée des excitations élémentaires qui oscillent dans le temps avec une phase transmise par le laser. Autrement dit, il existe initialement une relation bien définie entre les phases des excitations électroniques et celle du champ. Le régime qui suit immédiatement est le régime cohérent, dans lequel les excitations photocréées conservent la phase acquise. L'oscillation cohérente des excitations élémentaires est responsable de l'apparition d'une polarisation macroscopique dans le milieu, qui gouverne la réponse optique de ce dernier puisqu'elle apparaît comme terme source dans les équations de Maxwell. Cependant, cette cohérence disparaît peu à peu du fait des interactions entre porteurs, ou avec les phonons, les défauts du cristal, les interfaces... Les excitations se déphasent alors aléatoirement et la polarisation macroscopique décroît avec un temps caractéristique T_2 , temps de cohérence ou temps de déphasage de la polarisation. L'interaction avec les phonons augmente avec la température et le temps de cohérence devient alors très court. Dans tout le travail de cette thèse, nous nous sommes placés à basse température afin de ne pas être limité par le déphasage induit par les phonons. Les excitations élémentaires finissent par disparaître en se recombinant, radiativement ou non ; le temps caractéristique correspondant, c'est-à-dire le temps de vie T_1 , est en général beaucoup plus long que le temps de cohérence.

Le développement des lasers à impulsions ultra-courtes a rendu possible l'étude de la réponse cohérente dans les milieux denses où les déphasages sont généralement plus rapides que dans les milieux dilués. En effet, dans les semiconducteurs par exemple, la dynamique de la cohérence s'étend sur une échelle de temps de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes à quelques picosecondes. L'investigation du régime cohérent dans les semiconducteurs nécessite donc des techniques pico ou femtosecondes, telles la spectroscopie pompe-sonde, la diffusion Rayleigh, ou le mélange à quatre ondes, qui est une des techniques de spectroscopie cohérente non-linéaire utilisées à ces fins. Comme nous le verrons, cette technique apporte des informations riches sur la dynamique de la cohérence et les non-linéarités qui la gouvernent.

Dans ce chapitre, nous présentons d'abord une brève description du principe de cette technique. Nous donnons ensuite le cadre théorique qui décrit le régime cohérent. Nous l'introduisons dans un premier temps avec le cas des systèmes à deux niveaux indépendants. Nous verrons que la dynamique de la cohérence est décrite par les équations de Bloch optiques, à partir desquelles on peut calculer le signal de mélange à quatre ondes. Ce formalisme, développé et utilisé avec succès pour des milieux dilués a ensuite été appliqué à l'étude des semiconducteurs (voir par ex. [65]). Cependant l'importance des interactions dans un milieu dense comme les semiconducteurs rend la modélisation plus complexe. Nous rappelons que l'introduction des interactions coulombiennes aboutit aux équations de Bloch pour les semiconducteurs (voir par ex. [49]). Enfin nous discutons de quelques approximations, rendant possible le calcul du mélange à quatre ondes. En particulier, nous présentons le modèle de la *polarisation effective*, qui sera utilisé pour interpréter certaines de nos expériences (cf. chap. 4).

2.1 Principe de l'expérience

Une expérience de mélange à quatre ondes dégénérées en fréquence (configuration très commune que nous utiliserons dans cette thèse) consiste à faire interagir dans l'échantillon deux impulsions laser de même fréquence, et arrivant à deux instants différents (voir par ex. [66, 65]). La figure 2.1 en montre la géométrie : deux impulsions, de vecteur d'onde \vec{k}_1 et \vec{k}_2 , retardées d'un intervalle de temps Δt , sont focalisées sur l'échantillon. Tant que Δt est de l'ordre du temps de cohérence T_2 du matériau, l'interaction entre les deux impulsions donne naissance à un réseau de population cohérent. Une troisième onde est alors diffractée par ce réseau : la diffraction de Bragg de photons du faisceau de direction \vec{k}_2 (respectivement \vec{k}_1) donne naissance à un signal non-linéaire dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ (respectivement $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$), qui constitue le signal de mélange à quatre ondes. Ce signal apparaît donc dans une nouvelle direction, différente de celle des faisceaux incidents ; cela permet en théorie de mesurer des signaux faibles, bien qu'en pratique, la diffusion des faisceaux incidents puisse en limiter la mesure.

L'intensité de ce signal dépend de la cohérence du milieu ; pour un retard fixé Δt , son intensité décroît avec le temps caractéristique T_2 , car elle suit la perte de cohérence. Pour mesurer cette dépendance temporelle, il faut faire appel à des techniques particulières, par exemple « l'up-conversion »¹. On obtient ainsi le signal de mélange à quatre ondes résolu en temps (Tr-FWM pour « time resolved four wave mixing »).

¹On fait interagir dans un cristal non-linéaire le signal de mélange à quatre ondes avec une impulsion de référence, retardée d'un temps $\Delta t'$ par rapport au signal. Le signal de seconde harmonique créé est donné par la corrélation de ces deux signaux. En faisant varier le retard $\Delta t'$, on reconstruit la variation temporelle du signal de mélange à quatre ondes. L'obtention d'une bonne résolution temporelle nécessite que l'impulsion de référence soit courte devant T_2 .

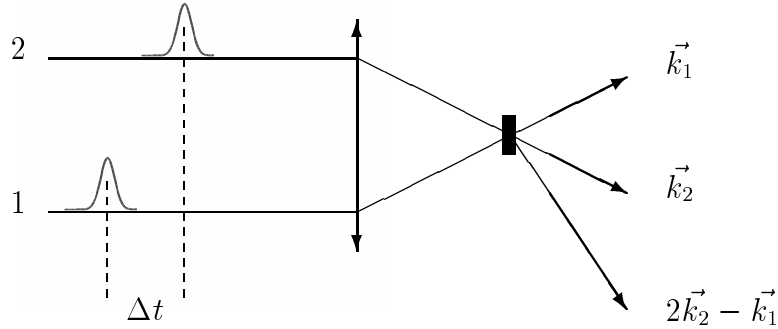


Fig. 2.1: Principe de l'expérience de mélange à quatre ondes : deux impulsions, provenant du même laser, et retardées d'un temps Δt sont focalisées sur l'échantillon. Un seul des deux signaux de mélange à quatre ondes est représenté, celui créé dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$.

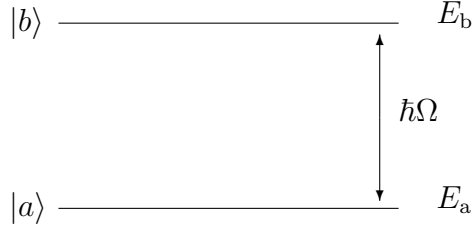
Alternativement, on peut intégrer le signal dans un détecteur lent et mesurer l'intensité intégrée en fonction du retard Δt . On mesure alors le mélange à quatre ondes intégré en temps (Ti-FWM pour « time integrated four wave mixing »). Dans le cas le plus simple, si l'intensité de signal de Tr-FWM est une exponentielle décroissante de temps caractéristique T_2 , l'intensité intégrée présente aussi une décroissance exponentielle avec Δt , de même constante de temps. On dispose alors, avec la mesure intégrée en temps, d'une technique plus sensible que la mesure du signal de Tr-FWM qui nécessite une « up-conversion » et limite les mesures aux fortes intensités. Néanmoins, il existe de nombreuses situations où les deux mesures sont complémentaires [39].

2.2 Systèmes à deux niveaux indépendants

Dans cette partie, nous présentons les résultats que donne un modèle de systèmes à deux niveaux indépendants. Toute interaction entre particules est négligée, ce qui est possible dans les milieux dilués, et qui constitue la plus simple approximation pour un ensemble d'excitons. Dans un premier temps, nous introduisons les équations de Bloch optiques qui décrivent la réponse cohérente d'un tel système. Nous exposerons ensuite comment est calculé le mélange à quatre ondes dans ce cas d'école (on pourra se reporter par exemple à [67, 39] et aux références incluses).

2.2.1 Équations de Bloch optiques

On considère un ensemble homogène de systèmes à deux niveaux, représenté schématiquement ci-dessous. $|a\rangle$ est le vecteur d'état correspondant à l'état fondamental d'énergie E_a , $|b\rangle$ est celui du niveau excité d'énergie E_b . On note $\hbar\Omega$ la différence d'énergie entre les deux niveaux ².



Dans la base des états $\{|a\rangle, |b\rangle\}$, la matrice densité s'écrit :

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1-n & p \\ p^* & n \end{pmatrix}$$

Les éléments diagonaux représentent les populations de chaque niveau. Pour un système à deux niveaux isolé, la population totale reste constante, c'est pourquoi la population de l'état fondamental ρ_{aa} vaut $1-n$, où $n = \rho_{bb}$ désigne la population de l'état excité. Quant aux éléments non diagonaux, ils traduisent les effets d'interférences entre $|a\rangle$ et $|b\rangle$ qui peuvent exister lorsque l'état du système est une superposition linéaire de $|a\rangle$ et $|b\rangle$, et sont désignés par « cohérences » pour cette raison.

La réponse du système soumis à un champ électromagnétique est déterminée par la polarisation macroscopique \vec{P} . Celle-ci est directement reliée aux éléments non diagonaux de la matrice densité. En effet, la polarisation est la moyenne de l'opérateur moment dipolaire $\hat{\vec{d}}$ multipliée par le nombre N de dipôles (constitués par les systèmes à deux niveaux) par unité de volume :

$$\vec{P} = N \text{Tr}(\hat{\rho} \hat{\vec{d}})$$

$\hat{\vec{d}}$ est un opérateur impair, aussi ses composantes diagonales sont nulles. En utilisant $\vec{d}_{ba} = \vec{d}_{ab}^*$, on a :

$$\vec{P} = N(\rho_{ab}\vec{d}_{ba} + \rho_{ba}\vec{d}_{ab}) = 2N \text{Re}(p\vec{d}_{ba}) \quad (2.1)$$

²contrairement au chap. 1 où $\hbar\Omega$ désigne le dédoublement de Rabi dans la microcavité

L'état du système à l'équilibre correspond à l'hamiltonien non perturbé $\hat{\mathcal{H}}_0$, dont les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont les états propres :

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \begin{pmatrix} E_a & 0 \\ 0 & E_b \end{pmatrix}$$

Lorsque le système est soumis à une excitation optique, il s'ajoute à cet hamiltonien un hamiltonien d'interaction $\hat{\mathcal{H}}_I$ avec le champ et un hamiltonien de relaxation $\hat{\mathcal{H}}_R$:

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_I + \hat{\mathcal{H}}_R$$

L'interaction avec le champ se traite dans l'approximation dipolaire électrique. En notant \vec{E} le champ électrique, l'hamiltonien d'interaction s'écrit alors :

$$\hat{\mathcal{H}}_I = -\hat{d} \cdot \vec{E} = \begin{pmatrix} 0 & -\vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} \\ -\vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{E}^* & 0 \end{pmatrix}$$

L'hamiltonien de relaxation $\hat{\mathcal{H}}_R$ inclut les processus qui ramènent le système à l'équilibre, par exemple, la désexcitation des porteurs qui entraîne le retour vers l'état fondamental, les collisions avec les phonons, ou entre porteurs ; dans ce modèle simple, ce sont des collisions avec un réservoir qui n'est pas explicité. Dans une approche phénoménologique, ces processus sont décrits par des taux de relaxation ; on obtient ainsi pour la variation de la population et de la cohérence :

$$\begin{aligned} \left(\frac{dn}{dt} \right)_{\text{Relax}} &= -\frac{n}{T_1} \\ \left(\frac{dp}{dt} \right)_{\text{Relax}} &= -\frac{p}{T_2} \end{aligned}$$

T_1 est le temps de relaxation longitudinal, c'est à dire le temps de vie du niveau excité ; T_2 est le temps de relaxation transverse, il correspond au temps de relaxation ou temps de déphasage de la cohérence. Le temps de cohérence comprend une composante due au temps de vie de l'état, et une autre due au temps de déphasage pur T_2^* selon $1/T_2 = 1/(2T_1) + 1/T_2^*$. De plus, rappelons que la largeur spectrale de la transition γ est reliée à T_2 par la relation $\gamma = 2\hbar/T_2$.

L'évolution du système est régie par l'équation de Liouville :

$$i\hbar \frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{\mathcal{H}}, \hat{\rho}] \quad (2.2)$$

Cette équation se réduit alors à deux équations couplées pour n et p , qui sont les *équations de Bloch optiques* :

$$\begin{cases} \frac{dn}{dt} = -\frac{n}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (p^* \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} - p \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{E}^*) \\ \frac{dp}{dt} = \left(-\frac{1}{T_2} + i\Omega\right)p + \frac{1}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} (1 - 2n) \end{cases} \quad (2.3)$$

Le terme $1 - 2n$ correspond à l'inversion de population. Il réduit le couplage avec le champ lorsque n augmente. Il correspond à un effet de saturation, ou de « remplissage de l'espace des phases » ou encore de « blocage de Pauli ». Comme nous allons le voir, c'est ce terme qui est ici responsable de l'apparition du mélange à quatre ondes.

Ce système d'équations est parfois écrit sous la forme d'une équation vectorielle qui décrit la rotation du vecteur de Bloch, dont la norme reste constante, égale à un, s'il n'y a pas de dissipation (cf. [49]).

2.2.2 Calcul du mélange à quatre ondes

Nous calculons ici la réponse temporelle du système dans une expérience de mélange à quatre ondes. Nous nous concentrons sur une des directions des signaux de mélange à quatre ondes, par exemple la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$. Nous en déduisons alors l'intensité du signal de mélange à quatre ondes intégré en temps (Ti-FWM).

Champ électrique

Pour une onde plane monochromatique de pulsation ω et linéairement polarisée dans la direction $\vec{\epsilon}$, le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E} = 2\mathcal{E}_0 \cos(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t) \vec{\epsilon} = \mathcal{E}_0 (e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} + e^{-i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}) \vec{\epsilon}$$

Dans le cas où l'excitation est quasi résonante, la pulsation du laser ω est proche de celle de la transition Ω . Nous allons nous placer dans l'approximation du champ tournant [67], qui consiste à négliger les termes non résonants et ne conserver que les termes quasi résonants, en $e^{-i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$.

Dans le cadre du calcul du mélange à quatre ondes dégénérées en fréquence, on s'intéresse à un champ électrique constitué de deux impulsions jumelles se propageant dans deux directions différentes \vec{k}_1 et \vec{k}_2 , et retardées l'une par rapport à l'autre par un intervalle de temps Δt :

$$\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 = \mathcal{E}_1 \mathcal{A}(\vec{r}, t) e^{-i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{\epsilon}_1 + \mathcal{E}_2 \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{\epsilon}_2 \quad (2.4)$$

\mathcal{E}_1 et \mathcal{E}_2 sont les intensités de chaque impulsion, $\mathcal{A}(\vec{r}, t)$ est l'enveloppe temporelle gaussienne de l'impulsion au point de l'espace \vec{r} et ω la pulsation centrale du laser correspondant au maximum de son spectre. \mathcal{A} varie lentement de telle sorte que l'impulsion contient un grand nombre de cycles optiques.

Développement des équations de Bloch optiques

Les équations de Bloch optiques 2.3 ne peuvent être résolues analytiquement dans le cas le plus général. Une solution est de traiter le champ électrique comme une perturbation, et de développer la matrice densité en série de termes d'ordre

0, 1, ... en champ, pour parvenir à une solution au n^{ième} ordre en champ. Formellement, la population et la cohérence (et donc la polarisation) deviennent :

$$\begin{aligned} n &= n^{(0)} + n^{(1)} + n^{(2)} + n^{(3)} + \dots \\ p &= p^{(0)} + p^{(1)} + p^{(2)} + p^{(3)} + \dots \end{aligned}$$

Les conditions initiales sont $n^{(0)} = 0$ et $p^{(0)} = 0$ (en l'absence de perturbation) puisqu'à l'équilibre thermique, seule la population du niveau fondamental est non nulle. En remplaçant les expressions de n et p ci-dessus dans les équations 2.3, on obtient une équation d'évolution à chaque ordre. On montre alors aisément, par résolution successive à chaque ordre, que les populations n d'ordre impaire et les cohérences p d'ordre paire sont nulles. Nous verrons que le signal de mélange à quatre ondes est relié à la polarisation d'ordre 3. Pour les trois premiers ordres, les équations s'écrivent alors :

$$\frac{dp^{(1)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega\right) p^{(1)} - \frac{1}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} = 0 \quad (2.5)$$

$$\frac{dn^{(2)}}{dt} + \frac{n^{(2)}}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (p^{(1)} \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{E}^* - p^{(1)*} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (2.6)$$

$$\frac{dp^{(3)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega\right) p^{(3)} + \frac{2}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} n^{(2)} = 0 \quad (2.7)$$

où le champ \vec{E} a l'expression 2.4.

L'annexe A décrit la résolution formelle de ces équations dans le cas général et dans le cas d'impulsions infiniment courtes. On procède de manière itérative, en résolvant l'équation d'ordre 1, dont la solution $p^{(1)}$ est incluse dans l'équation pour le second ordre pour pouvoir la résoudre à son tour et ainsi de suite jusqu'à obtenir $p^{(3)}$.

Résultats

Dans le cas d'impulsions infiniment courtes, le système précédent se résout analytiquement, et nous donnons ici les résultats représentés sur la figure 2.2. À la résonance ($\omega = \Omega$), la cohérence dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est (sans la partie oscillante) :

$$p_{221*}^{(3)}(t) \propto e^{-t/T_2} \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t)$$

On déduit de l'équation 2.1 la composante de la polarisation macroscopique à l'ordre 3 dans cette direction, qui vaut :

$$P_{221*}^{(3)}(t) \propto e^{-t/T_2} \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t)$$

Cette polarisation macroscopique est un terme source dans les équations de Maxwell. L'intensité du signal diffracté dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est proportionnelle au carré du module de $P_{221*}^{(3)}$:

$$I_{221*}^{(3)}(t) \propto |P_{221*}^{(3)}(t)|^2 \propto \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) e^{-2t/T_2}$$

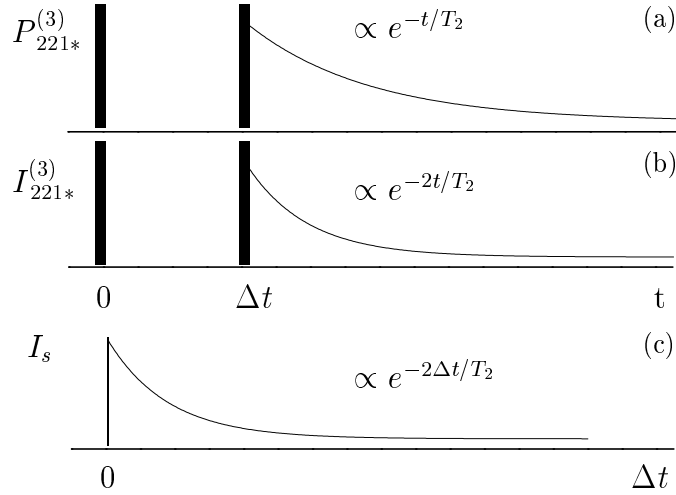


Fig. 2.2: Allure des signaux dans le cas d'impulsions ultra-courtes, la première arrivant en $t = 0$, la seconde en $t = \Delta t$ ($\Delta t > 0$). a) Polarisation à l'ordre 3 dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$. b) Intensité du signal de mélange à quatre ondes diffracté dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ (Tr-FWM), en fonction du temps. c) Intensité du signal de mélange à quatre ondes intégré en temps dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ (Ti-FWM), en fonction de Δt .

Le signal de mélange à quatre ondes résolu en temps (Tr-FWM) apparaît uniquement pour les retards positifs et décroît en e^{-2t/T_2} .

Le signal de mélange à quatre ondes intégré en temps a pour expression :

$$I_s(\Delta t) \propto \int dt |P_{2\vec{k}_2 - \vec{k}_1}^{(3)}(t, \Delta t)|^2 \propto e^{-2\Delta t/T_2} \theta(\Delta t) \quad (2.8)$$

et décroît avec la constante de temps $T_2/2$. On notera que pour le cas des systèmes à deux niveaux, il n'existe donc que pour des retards positifs.

Pour des impulsions gaussiennes de largeur finie, mais relativement petite devant T_2 , les résultats restent qualitativement les mêmes. Il est alors nécessaire, en général, de recourir à une résolution numérique (ce que nous ferons au § 4.2.2).

Cas d'une distribution inhomogène

Dans les paragraphes précédents, nous avons envisagé uniquement le cas d'une distribution homogène de systèmes à deux niveaux. Dans le cas d'une distribution inhomogène (systèmes à deux niveaux avec des énergies de transition différentes), le signal de mélange à quatre ondes est modifié. Si la largeur spectrale de la distribution inhomogène est grande devant la largeur homogène ($\gamma_{\text{inh}} \gg \gamma$), on peut montrer que le signal de mélange à quatre ondes résolu en temps n'est pas instantané mais apparaît au bout d'un temps Δt après la deuxième impulsion (écho

de photon, voir par ex. [65]). Le signal intégré en temps décroît alors exponentiellement avec un temps de déclin $T_2/4$, le temps de montée étant négligeable.

2.3 Cas du semiconducteur

Dans un semiconducteur, la situation est beaucoup plus complexe que celle d'un ensemble de systèmes à deux niveaux indépendants. Lorsqu'on ne considère que la bande de conduction la plus basse et la bande de valence la plus haute en énergie, on crée des électrons et des trous dans ces bandes à un vecteur d'onde \vec{k} donné par la relation de dispersion. Dans un milieu condensé tel un semiconducteur, on doit tenir compte de l'interaction entre porteurs, en particulier l'interaction coulombienne. On est donc en présence de systèmes à deux niveaux en interaction coulombienne, inhomogènes dans l'espace des vecteurs d'onde. Cette interaction à N corps entre les porteurs est responsable de changements importants dans les propriétés optiques du semiconducteur, notamment dans la réponse cohérente et non-linéaire.

L'introduction des interactions coulombiennes conduit aux équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs, qui ont été utilisées avec succès pour interpréter un grand nombre d'expériences dans les nanostructures. Après une description de ces équations, nous indiquons quelles approximations il est possible de faire pour pouvoir calculer le signal de mélange à quatre ondes. En particulier, nous voyons comment ces interactions influencent le signal de mélange à quatre ondes dans un cas simple. Enfin nous décrivons le modèle de la polarisation effective qui peut être déduit du formalisme microscopique, sur lequel nous fonderons l'analyse de certains de nos résultats (chap. 4).

2.3.1 Équations de Bloch pour les semiconducteurs

Nous considérons un ensemble d'électrons et de trous, d'énergie $E_{e,\mathbf{k}}$ et $E_{h,\mathbf{k}}$ respectivement (ces énergies suivent les relations de dispersion des bandes de conduction et de valence), en interaction coulombienne. Contrairement au cas des systèmes à deux niveaux précédemment étudiés, il constitue un ensemble de systèmes à deux niveaux couplés et inhomogènes. Remarquons que bien que la base initiale soit formée d'électrons et de trous dans une description bande à bande, les équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs permettent d'obtenir une description des effets excitoniques [49].

Comme au § 2.2.1, on note :

$n_{e,\mathbf{k}}(t)$, la population d'électrons de la bande de conduction en \mathbf{k} ,

$n_{h,\mathbf{k}}(t)$, la population de trous de la bande de valence en \mathbf{k} ,

$p_{\mathbf{k}}(t)$, la cohérence.

L'annexe B rappelle comment, en introduisant les interactions coulombiennes et en se plaçant dans une approximation de champ moyen (de « phase aléatoire »),

il est possible d'aboutir à des équations formellement identiques aux équations de Bloch optiques 2.3 : les équations de Bloch pour les semiconducteurs [48, 49] :

$$\begin{cases} \frac{dp_{\mathbf{k}}}{dt} &= -\frac{1}{i\hbar} (\mathcal{E}_{e,\mathbf{k}} + \mathcal{E}_{h,\mathbf{k}}) p_{\mathbf{k}} + \frac{1}{i\hbar} (1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}}) \Delta_{\mathbf{k}} - \frac{p_{\mathbf{k}}}{T_2} \\ \frac{dn_{e,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} [\Delta_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{e,\mathbf{k}}}{T_{1e}} \\ \frac{dn_{h,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} [\Delta_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{h,\mathbf{k}}}{T_{1h}} \end{cases} \quad (2.9)$$

où on a posé :

$$\mathcal{E}_{i,\mathbf{k}} = E_{i,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} n_{i,\mathbf{q}} \quad i = e, h \quad (2.10)$$

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}} \quad (2.11)$$

V_k est le potentiel coulombien dans l'espace réciproque. Il s'agit donc d'une généralisation des équations de Bloch optiques, qui en deviennent un cas limite ($V_k = 0$). Les interactions coulombiennes ont pour effet, d'une part, de renormaliser les énergies et d'introduire l'exciton (équation 2.10) et d'autre part, de changer la valeur de l'interaction entre le champ et le semiconducteur (équation 2.11). En effet, les paires électron-trou ne ressentent pas seulement le champ appliqué, mais aussi le champ dû à tous les dipôles que constituent les autres paires électron-trou excitées.

On retrouve le terme de remplissage de l'espace des phases (*cf.* § 2.2.1) :

$$(1 - n_{h,\mathbf{k}} - n_{e,\mathbf{k}}) \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} = (n_{v,\mathbf{k}} - n_{c,\mathbf{k}}) \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E}$$

Mais il n'est plus le seul terme de non-linéarité : on a aussi des termes couplant $p_{\mathbf{k}}$ et les populations via les interactions coulombiennes :

$$(n_{h,\mathbf{k}} + n_{e,\mathbf{k}}) \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}}$$

et ces termes constituent une seconde source de non-linéarités, propre à la matière condensée.

On montre simplement, à partir des équations 2.9 (en supprimant les termes phénoménologiques de relaxation), qu'il existe deux constantes du mouvement :

$$n_{e,\mathbf{k}} = n_{h,\mathbf{k}} \quad (2.12)$$

$$4|p_{\mathbf{k}}|^2 + (n_{e,\mathbf{k}} + n_{h,\mathbf{k}} - 1)^2 = 1 \quad (2.13)$$

On voit que la population de l'état de valence et celle de l'état de conduction en \vec{k} sont couplées (équation 2.12). L'équation 2.13 exprime la conservation de la norme du vecteur de Bloch (*cf.* § 2.2.1). Pour de basses densités d'excitation, cette dernière équation se réduit à $n_{e,\mathbf{k}} = n_{h,\mathbf{k}} = n_{\mathbf{k}} \approx |p_{\mathbf{k}}|^2$.

Modèle du champ local

On peut de nouveau calculer le mélange à quatre ondes dans le cas d'impulsions de Dirac, en se plaçant dans le cadre du modèle du champ local [50, 39]. Cela consiste à supposer que

$$\sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}} = V p_{\mathbf{k}},$$

avec $V \in \mathbb{R}$ un potentiel coulombien moyen. Cette approximation s'est avérée correcte pour interpréter de nombreux résultats [68, 69, 70], et nous permet de voir quelle est la modification des résultats obtenus dans le cas de systèmes à deux niveaux indépendants, exposés au § 2.2.2.

En prenant de plus pour $\mathcal{E}_{e,\mathbf{k}}$ et $\mathcal{E}_{h,\mathbf{k}}$ des énergies constantes, cette hypothèse revient à se ramener à un ensemble de systèmes à deux niveaux indépendants, auquel on adjoint des corrections pour rendre compte des interactions. En effet, les éléments non diagonaux de l'hamiltonien deviennent :

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + V p_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot (\vec{E} + \vec{E}_p)$$

En plus des effets du champ appliqué, ils comprennent ceux du champ \vec{E}_p , dû aux autres paires électron-trou, et qui est proportionnel à la polarisation. On prend donc en compte le champ local $\vec{E} + \vec{E}_p$ ressenti par l'exciton de vecteur d'onde \mathbf{k} .

Nous allons supposer que les temps de vie pour les trous et les électrons sont les mêmes, de sorte que $n_{e,\mathbf{k}} = n_{h,\mathbf{k}} = n_{\mathbf{k}}$. En suivant la même procédure de développement en ordre du champ (cf. § 2.2.2), on obtient :

$$\frac{dp_{\mathbf{k}}^{(1)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega_{\mathbf{k}}\right) p_{\mathbf{k}}^{(1)} - \frac{1}{i\hbar} \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} = 0 \quad (2.14)$$

$$\frac{dn_{\mathbf{k}}^{(2)}}{dt} + \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)}}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (p_{\mathbf{k}}^{(1)} \vec{d}_{vc}^* \cdot \vec{E}^* - p_{\mathbf{k}}^{(1)*} \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (2.15)$$

$$\frac{dp_{\mathbf{k}}^{(3)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega_{\mathbf{k}}\right) p_{\mathbf{k}}^{(3)} + \frac{2}{i\hbar} (\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + V p_{\mathbf{k}}^{(1)}) n_{\mathbf{k}}^{(2)} = 0 \quad (2.16)$$

où l'énergie de transition qui intervient est $\Omega_{\mathbf{k}} = \mathcal{E}_{e,\mathbf{k}} + \mathcal{E}_{h,\mathbf{k}} - V$ (renormalisation des énergies). Le système est alors découplé en \mathbf{k} . Nous pouvons alors le résoudre pour un état \mathbf{k} donné.

Les équations 2.14 et 2.15 sont les mêmes que dans le cas de systèmes isolés (équations 2.5 et 2.6). En revanche, l'équation du troisième ordre comporte un terme supplémentaire, dû aux interactions coulombiennes, qui va engendrer aussi des non-linéarités : $V p_{\mathbf{k}}^{(1)} n_{\mathbf{k}}^{(2)}$. A la différence du terme de remplissage de l'espace des phases $\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} n_{\mathbf{k}}^{(2)}$ qui ne va intervenir que sur le temps de la durée de l'impulsion, ce terme va agir plus longtemps puisque $p_{\mathbf{k}}^{(1)}$ se construit avec

l'impulsion et ensuite décroît avec le temps caractéristique T_2 . Cela va conduire à des modifications importantes dans la réponse cohérente.

Le détail des calculs est donné dans l'annexe B. L'intensité de signal de mélange à quatre ondes intégrée en temps est de la forme :

$$I_s^{(3)}(\Delta t) = \int dt |P_{221*}^{(3)}(t)|^2 \propto \theta(\Delta t) e^{-2\Delta t/T_2} (1 + 2(VT_2/\hbar)^2) + \theta(-\Delta t) e^{4\Delta t/T_2}$$

Il y a deux contributions pour les retards positifs, qui toutes deux décroissent avec la constante de temps $T_2/2$. Il est remarquable que le signal ne soit pas nul pour les retards négatifs, contrairement au cas des systèmes isolés. Il se construit avec la constante de temps $T_2/4$. Cela est uniquement dû à l'introduction des interactions coulombiennes. La figure 2.3 c montre l'évolution du signal de Ti-FWM avec le retard.

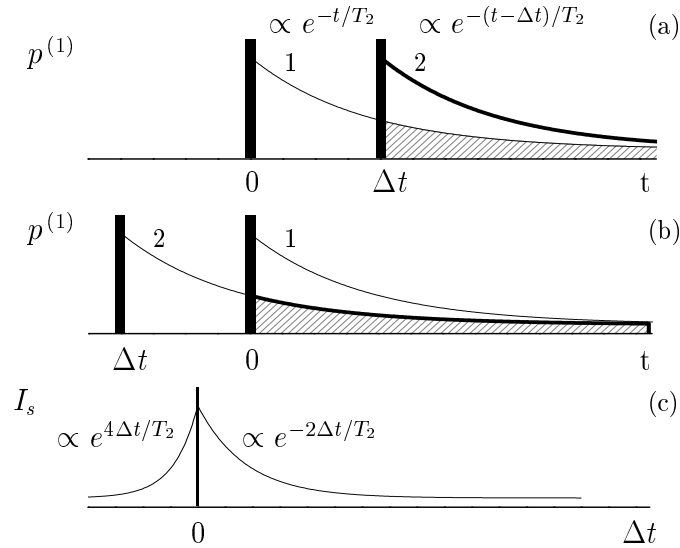


Fig. 2.3: Allure des signaux dans le cas d'impulsions ultra-courtes, la première arrivant en $t = 0$, la seconde en $t = \Delta t$, en présence d'interactions, pour un système homogène, dans le cas du modèle de champ local. La partie oscillante n'est pas montrée. 1 (respectivement 2) dénote la partie de la polarisation d'ordre 1 due à la première (respectivement la seconde) impulsion. Le réseau de population est créé lorsque ces deux polarisations se recouvrent (schématiquement représenté par les hachures). a) polarisation à l'ordre 1 pour $\Delta t > 0$. Le champ de la seconde impulsion et la polarisation due à la seconde impulsion (trait en gras) peuvent être diffractés par le réseau. b) polarisation à l'ordre 1 pour $\Delta t < 0$. Dans ce cas, seule la polarisation due à la seconde impulsion (et une partie seulement, trait en gras) est diffractée. c) signal de mélange à quatre ondes intégré en temps dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ (Ti-FWM), en fonction de Δt .

Interprétation intuitive

Un réseau de population est créé lorsque les deux impulsions se recouvrent, quel que soit l'ordre d'arrivée et représenté schématiquement par la zone hachurée sur la figure 2.3.

Examinons le cas du retard négatif, pour lequel la seconde impulsion arrive avant la première. Lorsque les interactions coulombiennes sont ignorées, c'est la diffraction du champ électrique de la seconde impulsion sur ce réseau qui est responsable de l'apparition du signal (cf. Annexe A); cela correspond à un terme source dû au remplissage de l'espace des phases : $\vec{E}_2 n^{(2)}$. Le champ de la seconde impulsion \vec{E}_2 ne peut être diffracté par le réseau, celui-ci n'étant pas formé (cf. fig. 2.3 b).

En revanche, en présence d'interactions coulombiennes, une partie de la polarisation d'ordre 1 due à la deuxième impulsion, $p_2^{(1)}$ (trait en gras sur la fig. 2.3 b) est diffractée par le réseau (terme source coulombien : $p_2^{(1)} n^{(2)}$).

La différence de temps caractéristique entre les retards positifs ($T_2/2$) et les retards négatifs ($T_2/4$) est bien connue, elle a été prévue théoriquement [71] et reportée expérimentalement [50, 68]. Nous détaillons l'origine de cette différence dans l'annexe B. Mais on peut en donner une explication simple. L'intensité du réseau de population diminue avec le retard. Elle décroît exponentiellement avec la constante de temps T_2 (cf. annexe A).

- Pour $\Delta t > 0$, la diffraction du champ électrique de la seconde impulsion sur le réseau, ou celle de la polarisation, crée une polarisation d'ordre 3 dont l'amplitude sera proportionnelle à l'intensité du réseau de population. L'intensité de Ti-FWM va donc décroître avec la constante de temps $T_2/2$, qu'elle soit due au blocage de Pauli ou aux interactions coulombiennes.

- Pour $\Delta t < 0$, nous venons de voir que seule la queue de la polarisation $p_2^{(1)}$ est diffractée. Or lorsque le retard diminue, la partie de la polarisation diffractée est de plus en plus petite et on sonde la décroissance exponentielle de $p_2^{(1)}(t)$. L'amplitude de la polarisation diffractée va dépendre de la décroissance de $p_2^{(1)}(t)$, et toujours de l'intensité du réseau de population. Comme on fait intervenir deux variations exponentielles avec une constante de temps T_2 , l'intensité varie exponentiellement avec la constante de temps $T_2/4$.

Expérimentalement, l'impact des interactions coulombiennes sur le mélange à quatre ondes a été mis en évidence dans des puits quantiques de semiconducteurs [68, 69, 70].

Déphasage induit par l'excitation

À ce niveau d'approximation, les équations de Bloch pour les semiconducteurs 2.9 ne permettent pas d'inclure tous les effets à N corps, en particulier les effets d'écrantage des interactions coulombiennes, et également la variation des taux de relaxation due aux collisions entre porteurs. En effet, l'interaction entre excitons et celle des excitons avec des porteurs libres, qui a de plus en plus d'importance lorsque la densité de porteurs augmente, conduit à un élargissement homogène des transitions [72], et donc à une variation du temps de cohérence (puisque la largeur spectrale de la transition est liée au temps de cohérence par la relation $2\hbar/T_2$).

Pour décrire ce « déphasage induit par l'excitation », il est nécessaire en toute rigueur d'aller au-delà de l'approximation de champ moyen (voir [49, 73]), à un ordre d'approximation plus élevé (ordre 5). Une alternative simplifiée et phénoménologique est d'inclure une dépendance en densité dans les énergies des équations 2.9 [74] ou d'introduire un taux de déphasage proportionnel à la population excitée [75]. Beaucoup d'études tiennent compte de cet effet phénoménologiquement, et c'est une approximation que nous utiliserons au § 4.2.2.

Cependant, des modèles théoriques ont été développés pour calculer dans certains cas l'élargissement spectral des transitions. Notamment, dans un modèle simple pour décrire les interactions coulombiennes entre excitons, Ciuti *et al.* ont calculé le poids des différents mécanismes qui contribuent à un élargissement [76] : l'interaction directe de Coulomb, l'interaction d'échange de trous, d'électrons et l'interaction d'échange d'exciton (échange de trous et d'électrons simultané). Nous utiliserons cette approche au chap. 5.

2.3.2 Modèle de la polarisation effective

Le modèle

Les équations de Bloch pour les semiconducteurs 2.9 représentent un ensemble d'équations couplées relativement complexe. On peut en déduire directement un modèle plus simple et intuitif, introduit par Wegener *et al.* [50], et utilisé d'abord par Schmitt-Rink *et al.* en 1991 [77] et Weiss *et al.* en 1992 [69]. Il s'agit de définir une polarisation interbande effective $P(t)$. L'avantage de ce modèle est de permettre de saisir les traits essentiels des mécanismes physiques, tout en étant simple et ainsi plus facile à traiter.

La polarisation est liée aux cohérences (éq. 2.1) :

$$\vec{P}_{\mathbf{k}} = 2n_{\mathbf{k}} \text{Re}(p_{\mathbf{k}} \vec{d}_{vc})$$

On peut remplacer cette équation par une « moyenne » de la polarisation P et réécrire les équations 2.9 moyennées sur les différentes contributions excitoniques. Pour plus de détails, on se reportera à l'article de revue de D. S. Chemla [38] où le modèle est exposé.

Si on se restreint à un régime d'excitation assez faible, on peut remplacer $n_{\mathbf{k}}$ par $|p_{\mathbf{k}}|^2$ (cf. équation 2.13). On obtient alors une seule équation à une dimension pour la polarisation effective P :

$$\frac{dP}{dt} = \left(i\Omega - \frac{1}{T_2}\right)P + \frac{1}{i\hbar} \left(1 - \frac{|P|^2}{|P_s|^2}\right) \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E} - \frac{1}{i\hbar} VP|P|^2 \quad (2.17)$$

où P_s est un paramètre de saturation, V un potentiel coulombien effectif, incluant le potentiel coulombien moyen, et Ω un paramètre qui rend compte de l'énergie de la transition excitonique en présence des interactions coulombiennes. On retrouve dans cette simple équation les termes sources de non-linéarités : le terme $|P|^2/|P_s|^2$ est le terme de remplissage de l'espace des phases ou de blocage de Pauli, qui exprime la saturation des excitons et $VP|P|^2$ celui dû aux interactions coulombiennes, à un niveau d'approximation de « phase aléatoire ».

Ce modèle a été utilisé avec succès pour expliquer de nombreuses expériences [77, 69, 78, 79, 80]. Il est parfois nécessaire, pour une analyse plus fine, de revenir aux équations microscopiques 2.9, mais ce modèle permet d'en donner une image intuitive [80].

Généralisation du modèle de la polarisation effective

Comme nous l'avons vu, les équations de Bloch pour les semiconducteurs 2.9 s'obtiennent par une approximation de champ moyen (approximation de « la phase aléatoire », voir l'annexe B) et ne tiennent pas compte des corrélations à quatre particules. Lorsqu'on établit les équations d'évolution pour les populations et la cohérence (cf. annexe B), on obtient des moyennes de produits à quatre opérateurs, représentant des fonctions de corrélation à quatre opérateurs. En continuant d'écrire l'évolution de ces moyennes d'opérateurs, on sait que les équations exactes forment un système d'équations couplées infini (cf. § 2.3.1).

Il est possible de tronquer ces équations de manière systématique [81, 82, 83]. Axt *et al.* [81] montrent que les fonctions de corrélation dans le cas de semiconducteurs excités par un champ électrique cohérent E varient en puissance du champ. Dans la limite des processus d'ordre 3, le système d'équations peut être tronqué en ne conservant que les termes en $O(E^{n \leq 3})$. Le système d'équations obtenu est une description théorique qui va au-delà de l'approximation de champ moyen.

À partir de ces équations, on peut de nouveau en déduire un modèle de polarisation moyenne. Il faut alors tenir compte de deux polarisations effectives P^+ et P^- , correspondant à l'absorption d'un photon σ^+ ou σ^- , et d'une « fonction de corrélation à quatre particules effective », B , représentant la transition vers le biexciton par l'absorption de deux photons σ^+ et σ^- .

En effet, le couplage de deux excitons donne naissance à un état non lié, correspondant à la combinaison anti-symétrique des fonctions d'onde des excitons,

et à un état lié, le biexciton, qui résulte de la combinaison symétrique, d'énergie plus basse E_{XX} . L'énergie de liaison du biexciton est donc la différence entre le double de l'énergie de l'exciton et l'énergie du biexciton (cf. fig. 2.4). Pour créer un biexciton, il est nécessaire d'avoir excité deux excitons ayant des projections de moment cinétique opposées. Les règles de sélection sont indiquées sur la fi-

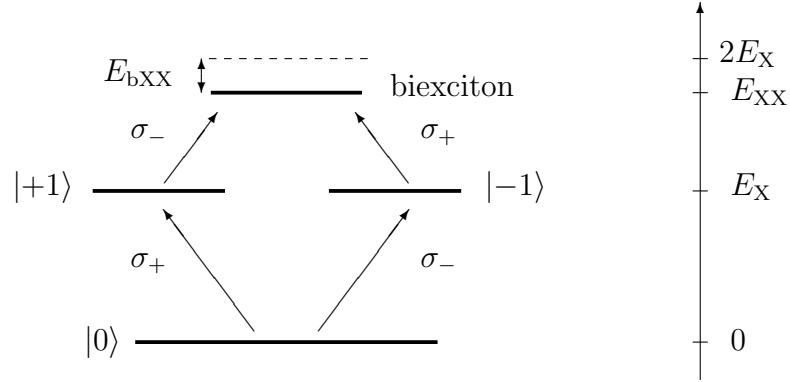


Fig. 2.4: Schéma des niveaux d'énergie du biexciton et des excitons. L'état $|0\rangle$ est l'état fondamental. L'état $|+1\rangle$ et $|-1\rangle$ représente les états des excitons ayant une projection du moment cinétique $+1$ et -1 . E_{bXX} est l'énergie de liaison du biexciton. Les règles de sélection sont aussi indiquées, σ_+ et σ_- étant les polarisations circulaires requises de la lumière.

gure 2.4. Cela se produit quand la lumière excitatrice a une polarisation linéaire. Lorsque le système est excité avec deux impulsions successives comme c'est le cas dans les expériences de mélange à quatre ondes, on peut exciter les biexcitons avec des faisceaux polarisés linéairement, ou ayant des polarisations circulaires opposées.

Les équations pour les polarisations effectives P^\pm sont alors :

$$\begin{aligned}
 \frac{dP^\pm}{dt} = & (i\Omega - \frac{1}{T_2})P^\pm + \frac{1}{i\hbar} \left(1 - \frac{|P^\pm|^2}{|P_s^\pm|^2}\right) \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E} - \frac{1}{i\hbar} V P^\pm |P^\pm|^2 \\
 & - \frac{1}{i\hbar} V_{XX}^{\text{exch}} P^\pm |P^\pm|^2 \\
 & + \frac{1}{i\hbar} V_{XX}^{\text{screen}} (P^\pm |P^\pm|^2 + P^\pm |P^\mp|^2) \\
 & - \frac{1}{i\hbar} V_{XX_2} B P^{\pm*}
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

- Elles sont formées à partir de l'équation 2.17 pour P^\pm , à laquelle sont ajoutés
- un terme d'échange entre excitons : $V_{XX}^{\text{exch}} P^\pm |P^\pm|^2$;
 - un terme d'écrantage par les excitons : $-V_{XX}^{\text{screen}} (P^\pm |P^\pm|^2 + P^\pm |P^\mp|^2)$;
 - un terme qui tient compte des interactions exciton-biexciton : $V_{XX_2} B P^{\pm*}$.

L'équation pour B est la suivante :

$$\frac{dB}{dt} = (i\omega_{X_2} - \gamma_{X_2}) B + \frac{1}{i\hbar} P^- P^+ \quad (2.19)$$

Ce modèle généralisé a été utilisé également avec succès et donne des résultats en accord avec d'autres approches théoriques [83, 84, 85, 86]. Il permet de faire apparaître les différentes contributions au signal non-linéaire en configuration co-linéaire ou contre-circulaire. On peut montrer qu'en configuration co-circulaire, les termes sources actifs sont le blocage de Pauli, les interactions coulombiennes moyennes et d'échange, et une partie de l'écrantage ($V_{XX}^{\text{screen}} P^\pm |P^\pm|^2$). En configuration contre-circulaire, ce sont l'autre partie de l'écrantage et les interactions exciton-biexciton qui interviennent.

2.4 Conclusion

Nous avons rappelé dans ce chapitre les bases du calcul de la réponse cohérente pour un ensemble de systèmes à deux niveaux, puis nous avons vu comment il fallait les modifier pour tenir compte des interactions coulombiennes dans un matériau dense comme un semiconducteur, et obtenir les équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs.

Dans le cas du mélange à quatre ondes intégré en temps, les interactions coulombiennes font apparaître un signal pour les retards négatifs. Le signal, pour un système homogène, décroît exponentiellement avec la constante de temps $T_2/2$, et croît exponentiellement deux fois plus vite.

Enfin nous avons indiqué comment on pouvait déduire un modèle simple à partir de ces équations complexes microscopiques, celui de la polarisation effective. Nous nous placerons dans le cadre de ce modèle pour calculer le mélange à quatre ondes en vue d'analyser certaines de nos expériences (cf. chap. 4).

Chapitre 3

Échantillons et dispositif expérimental

Ce chapitre présente les différents échantillons de microcavité étudiés au cours de cette thèse, et les dispositifs expérimentaux que nous avons mis en place. Après une description de la structure des échantillons, nous donnons les caractéristiques des matériaux, et celles des microcavités. Nous décrivons ensuite la source laser utilisée, ainsi que les expériences de caractérisation par réflectivité. Enfin, nous présentons le dispositif expérimental que nous avons monté pour l'étude du mélange à quatre ondes et le principe des expériences dont traiteront les chapitres suivants.

3.1 Échantillons de microcavité II-VI

3.1.1 Description des microcavités

Les deux échantillons de microcavité que nous avons étudiés, que l'on désignera par M1159 et M1121, ont été fabriqués par épitaxie par jets moléculaires au laboratoire de Spectrométrie Physique de Grenoble, par R. André de l'équipe de D. Le Si Dang et R. Romestain. Ils sont composés de matériaux binaires ou ternaires des colonnes II et VI du tableau périodique, à base de Tellure (élément de la colonne VI) et de Cadmium, Magnésium et Manganèse (éléments de la colonne II). Ces alliages cristallisent dans la structure blende de zinc. Les miroirs de Bragg sont constitués par un empilement de couches $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}/\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$; l'alliage $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ forme la cavité et constitue aussi la barrière des puits de CdTe que l'on y insère.

La structure des deux échantillons est détaillée dans les figures 3.1 et 3.2. L'échantillon M1159 est une cavité 2λ qui contient 6 puits, l'échantillon M1121 est une cavité $3\lambda/2$ contenant 4 puits.

Nous insisterons plus sur l'échantillon M1159, sur lequel la majeure partie du

travail de cette thèse a été faite, en raison de son plus grand dédoublement de Rabi et d'un meilleur état de surface.

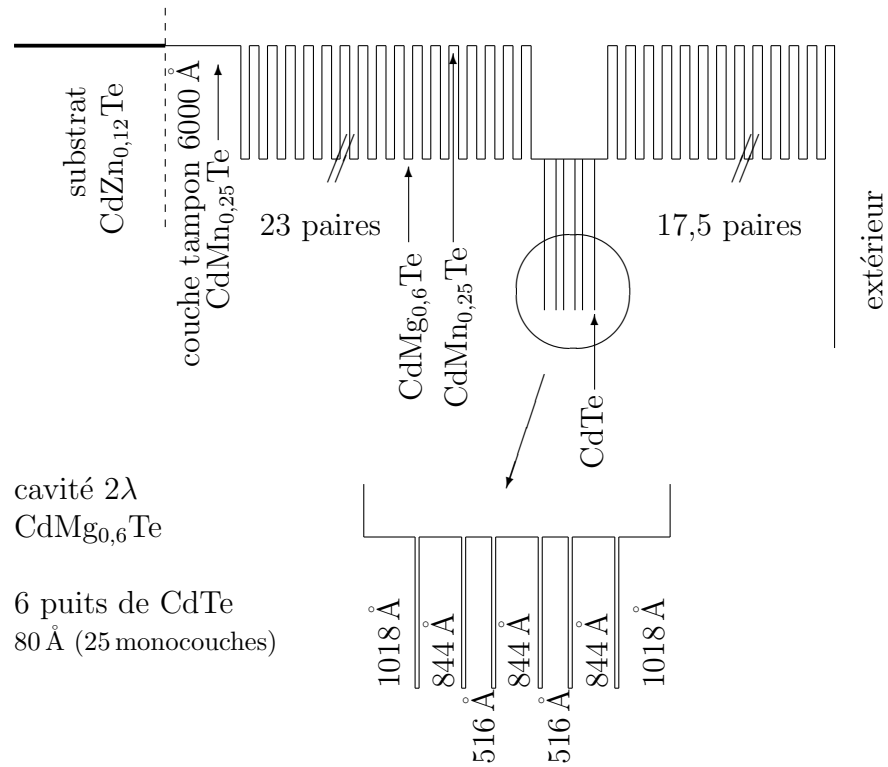


Fig. 3.1: Structure de l'échantillon M1159. Profil de la bande de conduction le long de l'axe de croissance.

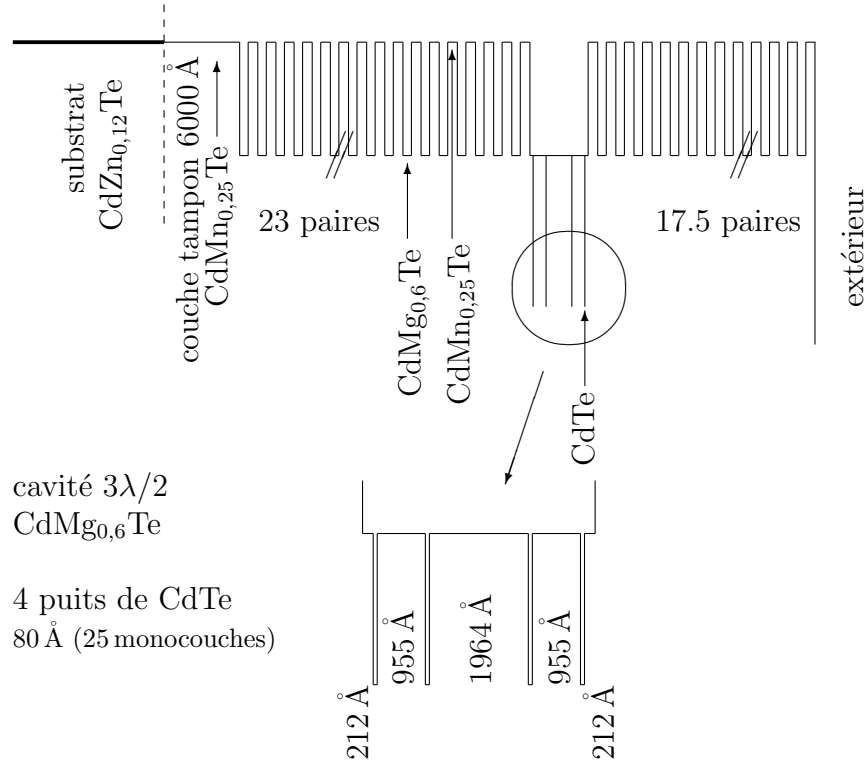


Fig. 3.2: Structure de l'échantillon M1121. Profil de la bande de conduction le long de l'axe de croissance.

3.1.2 Caractéristiques des matériaux

L'empilement de couches de nature différente requiert un bon accord de maille entre les différents matériaux de manière à avoir des couches régulières et une contrainte constante. Les alliages CdMgTe et CdMnTe qui constituent les miroirs de Bragg sont intéressants de ce point de vue. En effet, ces alliages ont un paramètre de maille qui peut être décrit par une loi de Végard pour une certaine plage de composition :

$$a_{\text{Cd}_{1-x}\text{A}_x\text{Te}} = (1 - x) a_{\text{CdTe}} + x a_{\text{ATe}}$$

où a_{CdTe} est le paramètre de maille de CdTe, et A est Mg, Mn¹ ou Zn. Les

¹le cristal zinc de blende MnTe n'existe pas naturellement, mais on peut considérer que Cd_{1-x}Mn_xTe est un alliage pseudobinaire de CdTe et MnTe, qui cristallise sous la forme blende de zinc ; on obtient le paramètre de maille pour cet hypothétique MnTe par extrapolation $x \rightarrow 1$

paramètres de maille des différents alliages sont [87, 88] :

$$\begin{aligned} a_{\text{CdTe}} &= 6,486 \text{ \AA} \\ a_{\text{MgTe}} &= 6,420 \text{ \AA} \\ a_{\text{MnTe}} &= 6,334 \text{ \AA} \\ a_{\text{ZnTe}} &= 6,102 \text{ \AA} \end{aligned}$$

Les mailles de $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ et $\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$ sont presque égales (cf. table 3.2) et comme la différence de maille avec $\text{Cd}_{0,88}\text{Zn}_{0,12}\text{Te}$ vaut 0,1 %, il est possible de faire croître un miroir de Bragg sur un tel substrat disponible commercialement.

En revanche, le matériau du puits quantique, CdTe et les barrières faites par le matériau de la cavité $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ possèdent un désaccord de maille qui n'est pas négligeable : $\Delta a/a \approx 0,62\%$. Cela induit une contrainte biaxiale qui lève la dégénérescence des niveaux de trous. Nous avons déjà noté qu'en général, l'exciton lourd est bien isolé et que nous ne nous préoccupons pas de l'exciton léger (cf. § 1.1.1). Cette levée de dégénérescence qui s'ajoute à celle du confinement conforte cette situation. L'énergie de transition correspondant à l'exciton léger dépend de la largeur du puits et est environ d'une trentaine de meV plus haute que celle de l'exciton lourd [89].

L'énergie de bande interdite de CdTe vaut 1,606 eV [87, 88, 90]. Pour CdMgTe et CdMnTe, elle suit une loi linéaire en fonction de la composition de Mn ou de Mg [87, 88] qui vaut pour $\text{Cd}_{1-y}\text{Mg}_y\text{Te}$:

$$E_g = 1,606 + 1,592 x \quad (3.1)$$

et pour $\text{Cd}_{1-x}\text{Mn}_x\text{Te}$

$$E_g = 1,606 + 1,85 y : \quad (3.2)$$

Le calcul par matrices de transfert de la réflectivité, de l'absorption, et de la transmission (cf. § 1.2.3) que nous avons utilisé nécessite de connaître les épaisseurs et les indices de toutes les couches.

Les indices de CdTe, CdMnTe et CdMgTe ont été mesurés par Régis André et Le Si Dang à basse température (4 K) [91], proche de la température à laquelle nous nous placerons (6 K). Les indices varient avec la longueur d'onde de la lumière λ et suivent une loi de Sellmeier :

$$n^2(\lambda) = a + b \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - c} \quad (3.3)$$

où a, b, et c sont des paramètres empiriques, dépendant de la composition x . Leurs valeurs à la longueur d'onde de $\lambda_0 = 7600 \text{ \AA}$ autour de laquelle nous travaillerons sont indiquées dans le tableau 3.1.

matériaux	$n^2(\lambda \text{ en } \mu\text{m})$	$n(\lambda = 760 \text{ nm})$
CdTe	$7,127 + 0,261 \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - 0,540}$	3,33
$\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$	$4,430 + 1,346 \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - 0,150}$	2,50
$\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$	$6,268 + 0,694 \frac{\lambda^2}{\lambda^2 - 0,335}$	2,82

Tab. 3.1: Indices des matériaux CdTe, $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ et $\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$, à 4 K.

Les couches des miroirs de Bragg doivent avoir une épaisseur optique de $\lambda/4$, où λ est la longueur d'onde de résonance des miroirs (cf. § 1.2.2); celle-ci est choisie pour correspondre à celle de la cavité et à celle de la transition excitonique $\lambda_0 = 7600 \text{ \AA}$. Les épaisseurs nominales sont alors de 675 \AA pour $\text{CdMn}_{0,25}\text{Te}$ et de 760 \AA pour $\text{CdMg}_{0,6}\text{Te}$.

Nous avons vu au § 1.2.2 qu'il fallait une grande différence d'indice entre les deux constituants du miroir de Bragg pour que la plage de longueur d'onde sur laquelle la réflectivité est proche de 1, soit large. Cela est bien réalisé avec les alliages CdMgTe et CdMnTe : le contraste d'indice $\Delta n/n$ vaut 12% et la bande d'arrêt $\Delta\lambda$ (cf. éq. 1.6) est de :

$$\Delta\lambda = \frac{2\Delta n}{\pi n} \lambda_0 = 57,3 \text{ nm} \Rightarrow \Delta E \approx 123 \text{ meV}$$

Nous résumons dans la table 3.2 les caractéristiques des constituants de la microcavité.

Nous avons vu au § 1.2.3 que la totalité de la microcavité pouvait être modélisée par une cavité Fabry-Pérot formée de miroirs métalliques sans épaisseur, d'épaisseur effective $L_{\text{DBR}} + L_0 = 3,95 \mu\text{m}$ (cf. §1.2.3) et d'indice effectif $n_{\text{cav}} = 2,875$ [92].

matériaux	CdTe	$\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$	$\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$
paramètre de maille (en Å)	6,486	6,446	6,449
$n(\lambda = 760 \text{ nm})$ à T=4 K	3,33	2,50	2,81
E_g (eV)	1,606	2,716	2,0

Tab. 3.2: Caractéristiques des matériaux CdTe, $\text{Cd}_{0,4}\text{Mg}_{0,6}\text{Te}$ et $\text{Cd}_{0,75}\text{Mn}_{0,25}\text{Te}$ dont sont constituées les microcavités.

3.1.3 Caractéristiques du puits et de la microcavité

Puits quantique

Nous donnons les valeurs de quelques énergies. L'énergie de la transition excitonique vaut environ 1,630 eV (environ 7600 Å). L'énergie de liaison pour l'exciton lourd est de l'ordre de 25 meV pour l'exciton du puits [93, 89, 94]. L'énergie de liaison du biexciton est de l'ordre de 5 meV dans nos puits [95].

Les masses effectives correspondant au mouvement dans le plan du puits de l'exciton sont [93, 96] :

$$m_e = 0,099 m_0 \quad (3.4)$$

$$m_h = 0,55 m_0 \quad (3.5)$$

avec $m_0 = 9,1.10^{-31}$ kg la masse de l'électron.

Le rayon de Bohr pour l'exciton du puits (cf. équation 1.1) est égal à $a_B^{2D} \approx 28$ Å.

La largeur homogène à très basse puissance de l'exciton lourd est de l'ordre de 0,15 meV [94].

Angles particuliers

Lors de notre étude en angle (cf. chap. 5), nous faisons varier l'angle d'incidence extérieur θ jusqu'à 30°. Il s'agit de voir si nous ne sommes pas limités par les processus dont nous avons discuté au § 1.2.3, les phénomènes de fuite, la réflexion totale à l'intérieur de la cavité.

- angle de fuite

L'équation 1.12 donne la valeur de l'angle limite de fuite : $\theta'_f = 15,55^\circ$. D'après la relation 1.11, cela correspond à un vecteur d'onde dans le plan de $k_f = 6,59.10^4 \text{ cm}^{-1}$. L'angle extérieur d'incidence sur la cavité vaut selon les lois de Snell-Descartes, $\theta_f = 50^\circ$. Nous voyons que nous ne sommes pas gênés par la fuite des photons par les modes de fuite, et qu'à tous les angles d'incidence nous nous trouvons dans la bande d'arrêt des miroirs.

- angle de réflexion totale

Un rayon lumineux reste piégé à l'intérieur de la cavité si son angle d'incidence interne θ' est supérieur à l'angle limite θ'_l égal à 20,4°. Le vecteur d'onde correspondant $k_{//}$ est :

$$k_l = \frac{2\pi n_{cav}}{\lambda_{cav}} \frac{1}{\sqrt{n_{cav}^2 - 1}} = 8,82.10^4 \text{ cm}^{-1}$$

La réflexion totale se produit à des angles plus grands que pour le phénomène de fuite, donc nous n'excitons pas de modes guidés.

- zone radiative des excitons (cf. § 1.1.2)

Les excitons couplés à la lumière possèdent un vecteur d'onde dans le plan $k_{//}$ inférieur à $k_r = nE_{\text{exc}}/\hbar c \approx 2,74 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$ (l'indice du puits n est 3,33 comme on l'a vu au § 3.1.2). Seuls ces excitons pourront se recombinaer radiativement. Les photons émis ont alors le même vecteur d'onde dans le plan (cf. éq. 1.3). En terme d'angle d'incidence, la zone radiative des excitons correspond à la plage d'angle interne inférieur à $\theta'_r = 49^\circ$. Nous excitons ainsi des polaritons dans la zone radiative des excitons.

Largeur du mode de la cavité

On peut calculer la largeur spectrale de la cavité dans le cas d'une cavité Fabry-Pérot effective (éq. 1.10). Celle-ci dépend des coefficients de réflexion des miroirs et de la largeur effective L_{eff} de la microcavité (donnée au § 3.1.2).

Les coefficients de réflexion en amplitude (cf. éq. 1.8 et 1.9) valent $r_1 = 0,988$ pour le miroir au contact de l'air, et $r_2 = 0,984$ pour l'autre miroir. Généralement, le nombre de couches du miroir déposé sur le substrat (N_2) est plus grand afin que les coefficients de réflexion soient presque égaux (dans nos échantillons, $N_2 = 23$ et $N_1 = 17,5$).

Ainsi, le calcul de la largeur γ_{cav} par cette équation 1.10 donne une valeur d'environ 0,5 meV pour les deux échantillons. Le calcul de la réflectivité par la méthode des matrices de transfert (cf. fig. 1.7) est en bon accord : la largeur à mi-hauteur est de 0,9 meV.

Gradient de la cavité

Les microcavités de puits quantiques sont volontairement construites de manière à présenter un gradient d'épaisseur. En effet, lors de l'épitaxie par jets moléculaires, le substrat n'est pas mis en rotation et les couches ne sont pas déposées uniformément. Ce gradient est cependant suffisamment faible pour que localement, la cavité puisse être considérée comme une cavité Fabry-Pérot à faces parallèles. En focalisant un faisceau de lumière avec un diamètre assez petit à la surface de l'échantillon et en le déplaçant, on peut faire varier l'énergie de la cavité.

Une variation de δL déplace la longueur d'onde de résonance de :

$$\frac{\delta \lambda}{\lambda} = \frac{\delta L}{L}$$

Une variation relative typique $\frac{\delta L}{L}$ de largeur est de 10 % quand on se déplace sur la longueur de l'échantillon (10 mm), ce qui donne une variation pour le mode de cavité de plus de 100 meV. En revanche, l'énergie de l'exciton du puits est beaucoup moins sensible à une variation d'épaisseur du puits, car elle est gouvernée principalement par l'énergie de bande interdite. En effet, comme nous l'avons vu

au § 1.1.1, $E_{\text{exc}} = E_g + E_1^e + E_1^h - E_l$; l'énergie de liaison E_l varie peu avec la largeur du puits, la référence [89] montre que E_l passe de 28 à 24 meV lorsque la largeur du puits augmente de 50 à 65 Å. L'énergie de confinement, elle, est directement liée à la largeur. Pour un puits infini, elle est inversement proportionnelle à L^2 . On a ainsi, en posant $E_1^e + E_1^h = E_{\text{conf}}$,

$$\frac{\delta E_{\text{conf}}}{E_{\text{conf}}} = \frac{2\delta L}{L}$$

La valeur de E_{conf} (49 meV) se déduit des valeurs de l'énergie de bande interdite et de liaison. Pour la même variation relative de largeur que précédemment (10%), la variation sur l'énergie de l'exciton est $\delta E_{\text{exc}} \approx \delta E_{\text{conf}} < 10$ meV. Cette variation est donc très faible par rapport à celle de la résonance de la cavité.

Ainsi, le long de l'échantillon, l'énergie de l'exciton reste pratiquement constante tandis que celle de la cavité varie linéairement. En déplaçant le faisceau laser le long de l'échantillon, on sonde alors l'anticroisement des deux modes de polaritons (cf. fig. 1.11).

Il existe également une petite variation de l'énergie du mode de cavité dans la direction perpendiculaire à celle du gradient (en fait, les lignes d'égale épaisseur sont des cercles); sur la largeur de l'échantillon (environ 2,5 mm), les énergies des polaritons peuvent varier jusqu'à 5 meV. Aussi nous avons sondé uniquement la zone centrale de l'échantillon. Des irrégularités dans la couche du puits peuvent induire une variation de l'énergie de l'exciton et il est parfois nécessaire de réajuster les paramètres.

Remarque

La figure 3.3 représente l'amplitude du champ électrique dans la cavité de l'échantillon M1159, calculée à l'énergie de la cavité, à partir de la méthode de matrices de transfert. On constate que les puits ne sont pas exactement placés au maximum du champ. De fait, cet échantillon faisait partie d'une série fabriquée en vue d'étudier l'influence du nombre de puits quantiques insérés dans la cavité, tout en gardant le dédoublement de Rabi constant. Pour ce faire, les puits n'ont pas été placés aux ventres de champ, mais à des positions intermédiaires.

3.2 Source laser

3.2.1 Description de la source laser

La source utilisée pour les expériences est un laser accordable Titane:Saphir, pompé par un laser Verdi 5 W, fonctionnant en mode bloqués par effet Kerr. Il existe deux régimes de fonctionnement, le régime picoseconde, et femtoseconde. C'est ce dernier mode de fonctionnement que nous avons utilisé. Le laser délivre

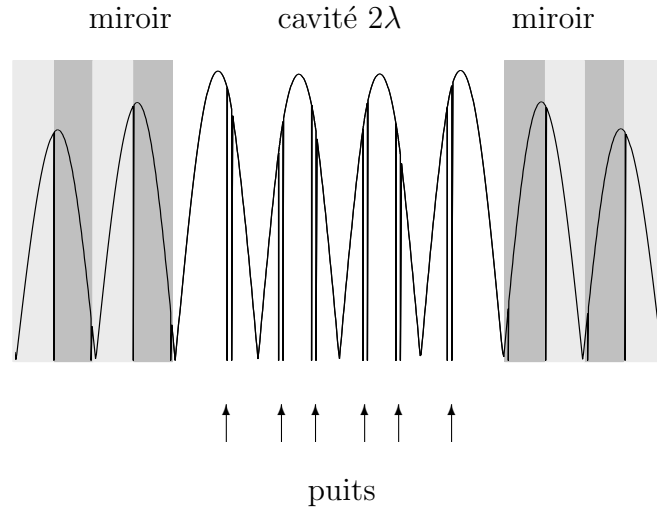


Fig. 3.3: Amplitude du champ électrique dans la cavité, le long de l’axe de croissance, pour l’échantillon M1159.

des impulsions à la fréquence de 76 MHz, soit une impulsion toutes les 13,2 ns. Il est accordable en longueur d’onde (de 725 à 900 nm environ), par rotation d’un filtre biréfringent. Ce filtre, ainsi que le cristal de Titane :Saphir, sont montés à l’angle de Brewster afin de minimiser les pertes dans la cavité laser, ce qui entraîne une polarisation horizontale. Un jeu de deux prismes permet de compenser la dispersion des vitesses des composantes spectrales de l’impulsion ; il est aussi utilisé pour régler la largeur spectrale des impulsions, et donc leur largeur temporelle. La puissance moyenne maximale, obtenue à la longueur d’onde de 800 nm, est d’environ 600 mW. La durée des impulsions étant d’une centaine de femtosecondes, la puissance de crête est de 80 kW, soit une énergie par impulsion de 8 nJ.

Les impulsions issues de cette source sont à peu près gaussiennes, et leur spectre et leur dépendance temporelle se correspondent par transformée de Fourier. La largeur à mi-hauteur du spectre de l’impulsion ΔE est alors reliée à la largeur à mi-hauteur du profil temporel τ : $\tau \Delta E / h = 0,441$. Nous pouvons mesurer la largeur spectrale du laser à l’aide d’un spectromètre, et la durée des impulsions par autocorrélation (cf. § 3.2.2).

3.2.2 Montage d’autocorrélation

Un montage d’autocorrélation permet de mesurer la largeur temporelle des impulsions laser. Cela nécessite d’avoir deux impulsions provenant du laser et retardées l’une par rapport à l’autre d’une durée ajustable Δt . La figure 3.4 représente le montage. Le faisceau laser est divisé en deux par une lame semi-réfléchissante ; le faisceau réfléchi parcourt un chemin optique fixe tandis que l’on peut faire varier la longueur du chemin suivi par le faisceau transmis grâce à une

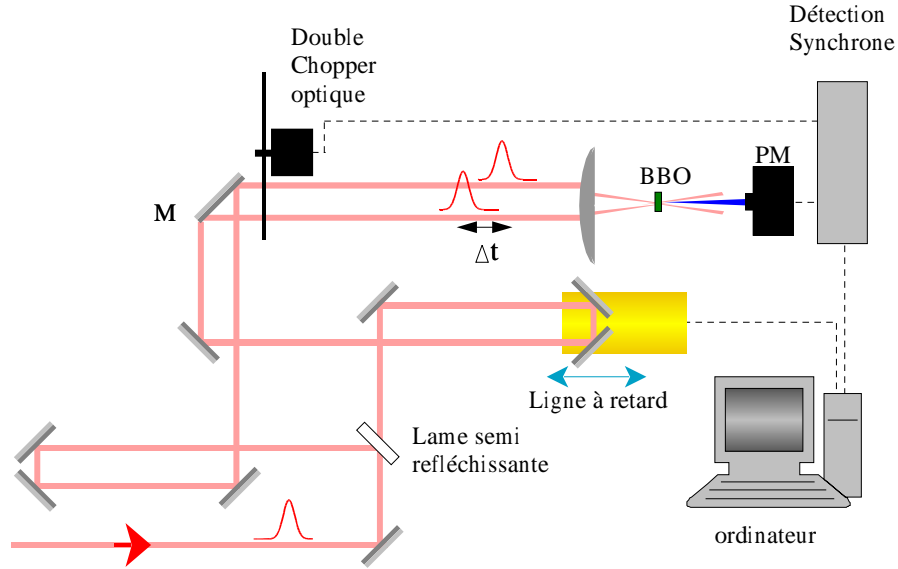


Fig. 3.4: Schéma du montage d'autocorrélation.

ligne à retard. Celle-ci est constituée de deux miroirs à 45° environ, de manière à réfléchir la lumière incidente dans la direction opposée. Ces miroirs peuvent être translatés à l'aide d'un moteur pas à pas ; leur déplacement est contrôlé avec une précision de $1 \mu\text{m}$.

Les deux impulsions, dont l'une est retardée de l'intervalle de temps Δt , sont alors focalisées sur un cristal de BBO (β -Barium Borate). Un photomultiplicateur sensible dans le bleu, couplé à une détection synchrone (cf. § 3.4.1) et placé dans la direction de la bissectrice des faisceaux transmis détecte le signal de seconde harmonique. On déduit de la mesure de ce signal, en fonction du déplacement de la ligne à retard et donc du retard Δt , la largeur temporelle des impulsions. Le déplacement de la ligne à retard est piloté par un ordinateur et la résolution temporelle est de 7 fs. L'acquisition du signal via la détection synchrone est gérée par un programme informatique.

Le cristal de BBO possède une susceptibilité du second ordre élevée. Pour des impulsions incidentes avec les vecteurs d'onde \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 et de fréquence ω , le signal de génération de seconde harmonique ($\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = 2\omega$) et de vecteur d'onde \mathbf{k}_3 est maximum pour $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_3 = 0$ (condition d'accord de phase) [66, 65]. Cela impose pour les indices :

$$\omega_1(n(\omega_1) - n(\omega_3)) + \omega_2(n(\omega_2) - n(\omega_3)) = 0$$

donc $n(\omega_1) - n(\omega_3) = 0$ et $n(\omega_2) - n(\omega_3) = 0$. En général, cela ne peut être vérifié, $n(\omega)$ étant une fonction monotone. Mais dans un cristal biréfringent uniaxe, cette condition peut être satisfaite en orientant correctement le cristal. Un des deux indices est ordinaire, l'autre est extraordinaire. Dans la direction $\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2$, le

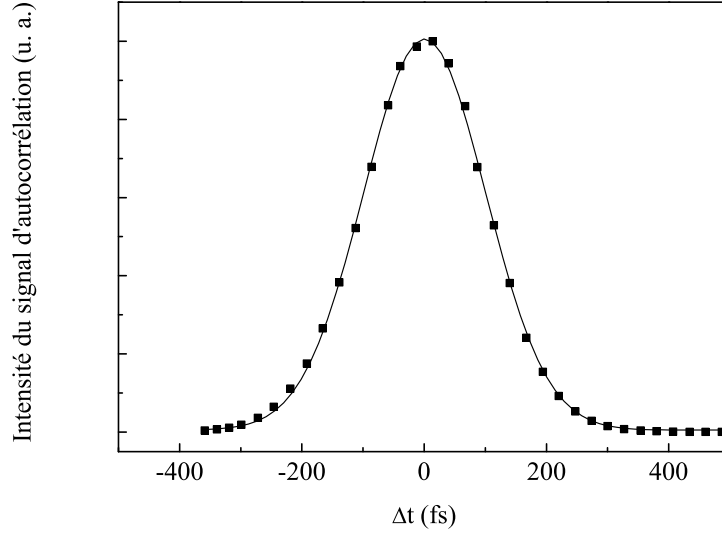


Fig. 3.5: Exemple de signal d'autocorrélation du laser (symboles). La courbe en trait continu est un ajustement par une gaussienne.

signal de seconde harmonique est proportionnel au carré du module de la polarisation d'ordre 2, elle-même proportionnelle au produit des deux champs incidents. Mesuré dans un détecteur lent, le signal qu'on obtient est proportionnel à :

$$S(\Delta t) = \int I(t)I(t - \Delta t)dt$$

qui est le signal d'autocorrélation. Le profil de l'intensité de l'impulsion $I(t)$ est une gaussienne de largeur τ ; le signal d'autocorrélation $S(\Delta t)$ est alors la convolution de deux gaussiennes, qui est aussi une gaussienne, centrée en $\Delta t = 0$, de largeur $\tau_{AC} = \sqrt{2}\tau$.

La figure 3.5 montre un exemple d'une mesure d'autocorrélation.

3.3 Caractérisation des échantillons

La caractérisation des échantillons permet de connaître précisément les énergies des polaritons, et de déduire le dédoublement de Rabi. De plus, le gradient d'épaisseur permet d'ajuster le désaccord exciton-photon en se déplaçant le long de la microcavité. Il est alors nécessaire de déterminer le désaccord en fonction de la position du laser sur l'échantillon, et de mesurer les énergies des polaritons correspondantes, c'est-à-dire obtenir la courbe d'anticroisement des polaritons.

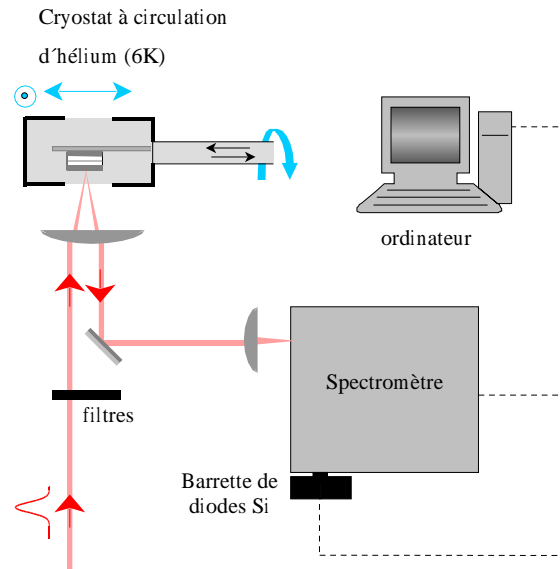


Fig. 3.6: Schéma du montage expérimental pour les mesures de réflectivité.

3.3.1 Montage expérimental

Toutes les expériences réalisées durant ce travail de thèse l'ont été à basse température (6 K). Pour cela, l'échantillon est placé dans un cryostat optique à circulation continue d'hélium. Il est collé sur un doigt froid, qui est au contact d'un circuit d'hélium liquide assurant le refroidissement. Un système de régulation permet de maintenir pendant plusieurs heures une température constante de 6 K, grâce à une résistance chauffante et au contrôle du flux d'hélium par l'ouverture réglable d'un pointeau. Afin d'ajuster finement le désaccord exciton-photon, il est nécessaire de pouvoir déplacer le faisceau laser sur la surface de l'échantillon. Dans ce but, nous avons choisi de monter le cryostat sur une platine de déplacement micrométrique, permettant un déplacement vertical (dans le sens du gradient de cavité le plus fort) et horizontal. De plus, le cryostat peut tourner autour de son axe; on peut ainsi faire varier l'angle d'incidence des faisceaux lumineux.

Pour effectuer les spectres des différents signaux (réflectivité de l'échantillon ici, mais aussi laser d'excitation, et mélange à quatre ondes), nous disposons d'un monochromateur à réseau (1200 traits par mm). À la sortie se trouve une barrette de photodiodes Si, qui délivre un signal traité par un programme d'acquisition. Pour l'ouverture de fente la plus couramment utilisée, $100\ \mu\text{m}$, la résolution est de $1,5\ \text{\AA}$. Elle est limitée par le spectromètre, la résolution due à la taille d'un pixel de la barrette de diode étant de $0,4\ \text{\AA}$. À nos énergies, la résolution est de $0,3\ \text{meV}$.

Ce dispositif expérimental est représenté sur la figure 3.6.

3.3.2 Anticroisement

Nous utilisons une impulsion laser de courte durée (100 fs typiquement), de manière à ce que sa largeur spectrale soit suffisamment large ($\Delta E \approx 18$ meV) pour exciter les deux polaritons. Le spectre du faisceau réfléchi prend la forme d'une gaussienne qui présente deux creux correspondant aux modes de polaritons (cf. fig. 4.1 b par ex.). En normalisant par le spectre de l'impulsion, nous obtenons la réflectivité de la microcavité. Quelques exemples en plusieurs points sur l'échantillon M1159, correspondant à plusieurs désaccords, sont montrés sur la figure 3.7.

En repérant l'énergie des minima de réflectivité en fonction de la position x sur l'échantillon, on reconstruit la courbe d'anticroisement en incidence normale. Cette courbe est représentée sur la figure 3.7 pour l'échantillon M1159. Elle est

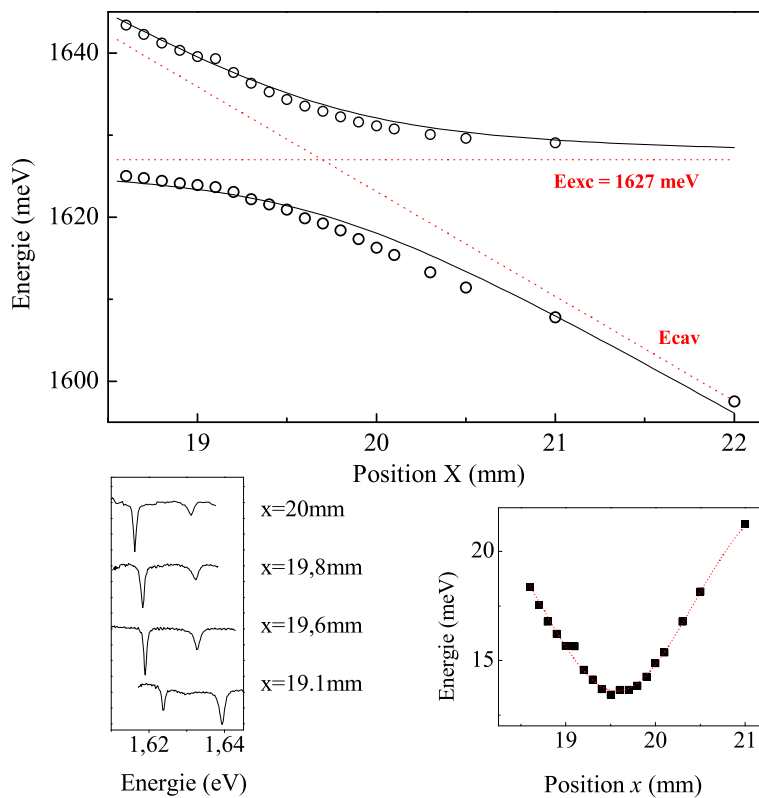


Fig. 3.7: Courbe d'anticroisement obtenue en incidence quasi normale (symboles), pour l'échantillon M1159. Les courbes en pointillés montrent les variations des énergies de l'exciton et de la cavité, déduites de l'ajustement de l'anticroisement (courbes en trait continu). En bas : spectres de réflectivité pour quelques positions sur l'échantillon et variation de l'écart en énergie entre les deux modes le long de l'échantillon.

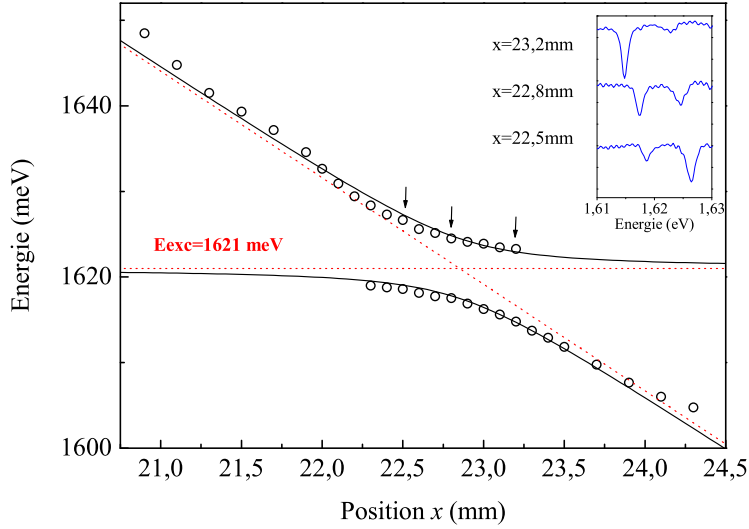


Fig. 3.8: Courbe d’anticroisement obtenue en incidence quasi normale, pour l’échantillon M1121, et quelques spectres de réflectivité pour les positions indiquées par les flèches. Les énergies de l’exciton et de la cavité (en pointillés) sont déduites de l’ajustement (trait continu) des points expérimentaux (symboles).

bien reproduite par le modèle d’oscillateurs couplés (cf. § 1.3.2). En négligeant les largeurs de raies, les énergies des polaritons sont (éq. 1.15) :

$$E_{\pm}(k_{//}) = \frac{E_{\text{exc}} + E_{\text{cav}}(x)}{2} \pm \frac{\sqrt{(E_{\text{exc}} - E_{\text{cav}}(x))^2 + 4V^2}}{2}$$

Nous ajustons l’énergie de l’exciton, de la cavité et le couplage V pour retrouver la variation des énergies des polaritons. On en déduit un couplage $V = 6,8 \text{ meV}$; cette valeur est cohérente avec la valeur du dédoublement de Rabi Ω , correspondant au minimum de la différence d’énergie des deux modes, qui vaut $\Omega = 2V = 13,6 \text{ meV}$.

La courbe d’anticroisement pour l’échantillon M1121 est représentée sur la figure 3.8. Le dédoublement de Rabi est de 7 meV .

3.3.3 Courbe de dispersion

La mesure de la réflectivité pour différents angles d’incidence permet d’accéder à la dispersion des polaritons (cf. § 1.3.3). La figure 3.9 montre l’énergie des polaritons de basse énergie et haute énergie mesurée par réflexion (symboles) pour différents angles d’incidence, sur l’échantillon M1159 (pour un petit désaccord de 3 meV). Les courbes en trait plein sont les dispersions calculées par le modèle d’oscillateurs couplés (éq. 1.18). Le calcul numérique par la méthode des matrices de transfert donne un résultat identique.

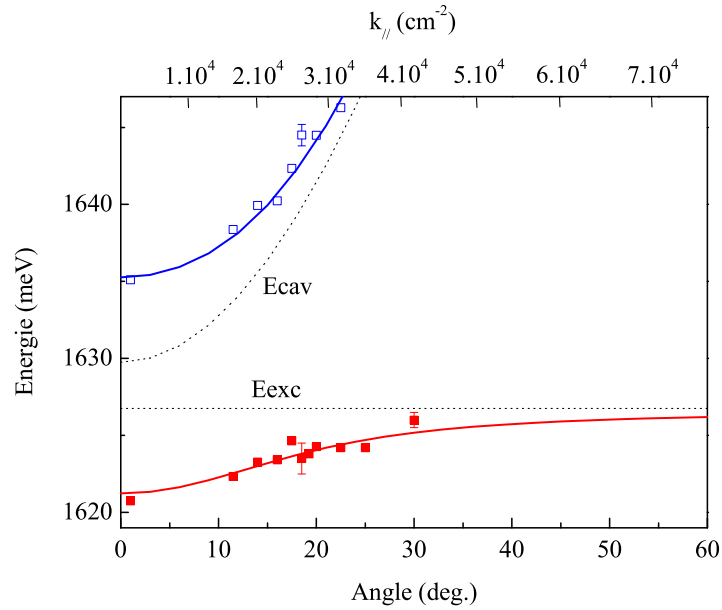


Fig. 3.9: Dispersion en énergie des polaritons pour un désaccord de 3 meV, calculée d'après le modèle d'oscillateurs couplés (traits plein), et mesurés en réflectivité (symboles). La dispersion de l'exciton et de la cavité sont en pointillés.

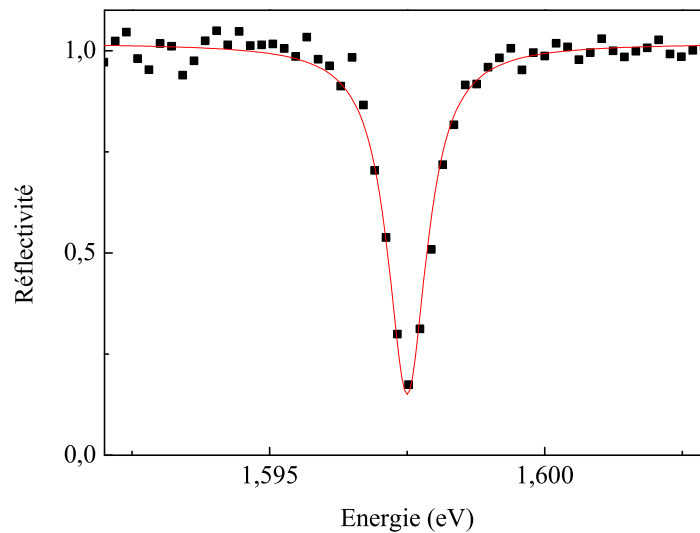


Fig. 3.10: Spectre de réflectivité (symboles) à un désaccord de -30 meV pour l'échantillon M1159. Une lorentzienne (en trait continu) reproduit bien la courbe expérimentale (symboles), avec une largeur à mi-hauteur de $0,86$ meV.

3.3.4 Largeur du mode de cavité

Afin de déterminer expérimentalement la largeur spectrale du mode de cavité, nous avons effectué une mesure de la réflectivité à un désaccord très négatif. En effet, dans ce cas, le mode basse énergie a un poids excitonique négligeable et sa largeur est essentiellement celle de la cavité. La figure 3.10 montre un tel spectre de réflectivité pour l'échantillon M1159. La raie est bien reproduite par une lorentzienne de largeur à mi-hauteur 0,86 meV, en bon accord avec la largeur obtenue par calcul matriciel (cf. § 3.1.3).

3.3.5 Réflectivité à basse puissance à la résonance : largeur des modes

La figure 3.11 montre un spectre de réflectivité obtenu à la résonance. Le polariton de basse énergie a une largeur à mi-hauteur de 0,85 meV, et on mesure 1,5 meV pour celle du polariton de haute énergie. Le fait que le polariton de haute énergie soit plus large que celui de basse énergie a été observé dans des travaux antérieurs [97, 98, 99]. Cela a d'abord été expliqué en terme de « motional narrowing », qui désigne la réduction d'une largeur de raie dans un système désordonné par des effets de moyenne, et qui serait plus efficace pour le polariton de basse énergie [97, 100]. En fait, cet effet a été bien reproduit par des modèles linéaires [101, 102, 98, 99, 103], mettant en évidence le rôle particulier de l'inhomogénéité dans les microcavités.

En effet, dans le cas d'un exciton inhomogène élargi symétriquement, Hou-

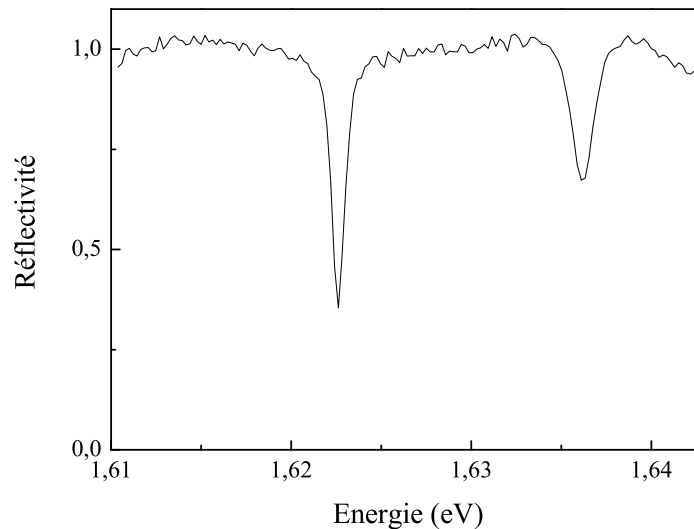


Fig. 3.11: Spectre de réflectivité à un désaccord nul pour l'échantillon M1159.

dré *et al.* [101] montre qu'il est possible de coupler la cavité à la partie homogène de l'exciton. Lorsque le dédoublement de Rabi Ω est beaucoup plus grand que la largeur de l'exciton et celle de la cavité, γ_c , les deux polaritons à la résonance ont des largeurs de l'ordre de $(\gamma_x^{\text{hom}} + \gamma_c)/2$, où n'intervient que la largeur homogène de l'exciton γ_x^{hom} . En effet, la raie excitonique est la convolution d'une lorentzienne et d'une gaussienne qui représente la distribution inhomogène de la transition. Dans cette situation où Ω est très grand devant la largeur de l'exciton, ce sont les ailes de la raie excitonique qui interviennent dans le couplage et qui s'apparentent plus à une lorentzienne.

La différence des largeurs de raies entre les deux polaritons s'explique par une inhomogénéité asymétrique de l'exciton, dont la raie est élargie du côté haute énergie [99]. À la résonance, le polariton de basse énergie sonde la queue de la transition excitonique qui est presque lorentzienne. Le polariton de haute énergie, quant à lui sonde l'aile de la raie excitonique gaussienne, et est donc plus large spectralement. Une autre conséquence est qu'à désaccord nul, les minima des pics de réflectivité sont différents à la résonance : la réflectivité à l'énergie du mode basse énergie est la plus petite (0,35 contre 0,67 pour le polariton de haute énergie, cf. fig. 3.11).

Ces résultats montrent que le polariton de haute énergie (resp. de basse énergie) dans nos microcavités est sans doute couplé à la partie inhomogène (resp. homogène) de l'exciton. D'autre part, nous avons vu que $\gamma_c \approx 0,9$ meV, et $\gamma_x^{\text{hom}} \approx 0,15$ meV. Nous devons être dans le cas où $\Omega \approx 14$ meV $\gg \gamma_x$; alors la largeur du polariton de basse énergie devrait être égale à $(\gamma_x^{\text{hom}} + \gamma_c)/2 \approx 0,53$ meV. Compte tenu de la résolution du spectromètre (0,3 meV), cette valeur est très proche de la valeur expérimentale.

On peut ainsi conclure que le polariton de basse énergie est quasi homogène à basse puissance d'excitation.

3.3.6 Comparaison avec les spectres calculés

Le calcul matriciel permet de reproduire raisonnablement les spectres, sachant qu'on n'a tenu compte ni d'élargissement inhomogène, ni de l'absorption par le continuum de l'exciton². Pour tenir compte du gradient de la cavité, nous avons fait varier uniformément l'épaisseur des couches autour des épaisseurs nominales dans le calcul par matrices de transfert. La force d'oscillateur du puits est ajustée pour reproduire la valeur expérimentale du dédoublement de Rabi. Nous trouvons pour l'échantillon M1159, une force d'oscillateur d'environ $18 \cdot 10^{12}$ cm⁻², ce qui est cohérent avec les données de la littérature [93, 94, 104].

La comparaison des spectres de réflectivité expérimentaux avec le calcul de la réflectivité par la méthode des matrices de transfert permet de déduire le

²Vu ce cadre simplifié, le désaccord exciton-photon déduit de ce calcul est décalé d'environ 2,5 meV du désaccord donné par la courbe d'anticroisement

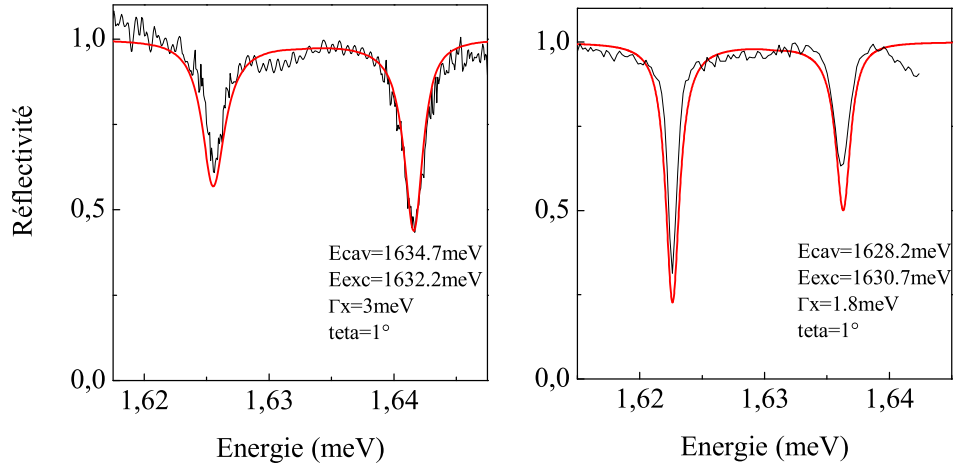


Fig. 3.12: Exemples de calculs de spectres de réflectivité pour un désaccord de 5 meV (à gauche) et pour un désaccord nul (à droite). Les paramètres du calculs sont notés sur chaque figure. La largeur de l'exciton Γ_x qui intervient dans l'absorption excitonique (cf. § 1.3.2) varie avec la puissance incidente.

désaccord exciton-photon (mais décalé, voir la note 2), et la largeur de l'exciton, qui augmente avec la puissance incidente. Ces paramètres correspondant à l'expérience sont alors utilisés pour calculer la transmission et l'absorption. En particulier, le calcul de l'absorption dans les conditions de notre expérience nous est utile pour calculer la densité de porteurs injectés (cf. annexe D). La figure 3.12 montre deux exemples de calculs, pour un désaccord nul (à droite) et de +5 meV (à gauche).

3.3.7 Transition vers le couplage faible

Nous avons vu au § 2.3.1 qu'augmenter la densité d'excitation induisait un élargissement de la transition excitonique. Cela a pour conséquence de provoquer une transition vers le couplage faible quand la largeur de raie n'est plus petite devant le dédoublement de Rabi (cf. § 1.3.2). Nous montrons sur la figure 3.13 un spectre de réflectivité à basse puissance, où le système est en couplage fort, et un spectre à forte puissance où le couplage fort a laissé place au couplage faible, et où n'apparaît que le mode de cavité, élargi par l'absorption dans le puits. En excitant ainsi les deux modes, en incidence normale, le couplage faible apparaît à la densité de porteurs $n_w = 1,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$.

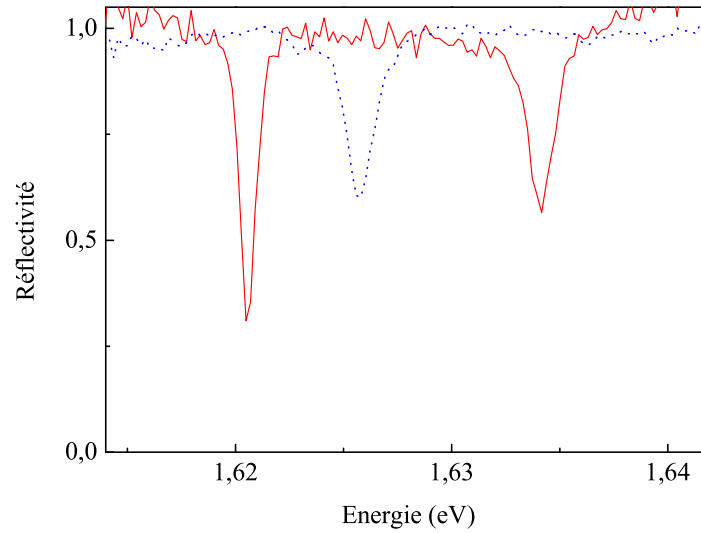


Fig. 3.13: Spectre de réflectivité à un désaccord nul pour l'échantillon M1159 à basse puissance ($3 \cdot 10^{-4} \text{ W/cm}^{-2}$, trait continu) et à forte puissance (330 W/cm^{-2} , trait en pointillés)

3.4 Dispositif expérimental pour les expériences de mélange à quatre ondes

3.4.1 Montage expérimental

La figure 3.14 présente un schéma du montage expérimental qui a été mis en place pour nos expériences de mélange à quatre ondes. Nous avons vu comment on obtient deux impulsions retardées l'une par rapport à l'autre (cf. § 3.2.2). Les deux faisceaux incidents se trouvent dans un plan horizontal, et sont focalisés sur l'échantillon grâce à une lentille de focale 15 cm. Ils forment entre eux un angle de 1° . Le signal de mélange à quatre ondes est détecté en réflexion et est mesuré par une photodiode Silicium à avalanche, reliée à une détection synchrone. Aux très faibles puissances d'excitation, de la diffusion résiduelle collectée par le système de détection dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ peut masquer le signal de mélange à quatre ondes. Pour s'en affranchir, on place un dispositif de filtrage spatial devant la diode (un simple diaphragme suffit quand la situation n'est pas critique). L'enregistrement du signal de mélange à quatre ondes en fonction du retard se fait via un programme informatique qui gère le déplacement de la ligne à retard et l'acquisition du signal délivré par la détection synchrone, comme dans le cas de l'autocorrélation (cf. § 3.2.2). Des densités optiques placées sur le chemin des faisceaux permettent d'ajuster la puissance d'excitation. Nous avons aussi placé une lame $\lambda/4$ sur chaque chemin convenablement orientée pour obtenir des faisceaux polarisés circulairement.

Les recouvrements spatial et temporel des deux impulsions sur l'échantillon sont les deux réglages critiques pour trouver le signal de mélange à quatre ondes. Le recouvrement temporel ($\Delta t \approx 0$) est réalisé en premier lieu en utilisant le montage d'autocorrélation. Le recouvrement spatial est optimisé en cherchant le maximum de l'intensité du signal.

Dans l'expérience de mélange à quatre ondes, l'amplification à détection synchrone est couplée à un hacheur optique différentiel (chopper). Ce hacheur, qui tourne avec la pulsation ω , est constitué de quatre séries de trous concentriques, comprenant un nombre différent de trous. En passant par deux rayons différents, contenant 9 et 16 trous, chacun des deux faisceaux incidents est modulé avec une fréquence différente ($\omega_1 = 9\omega$ et $\omega_2 = 16\omega$); la troisième rangée contenant 25 trous, correspond à la somme de ces deux fréquences; une diode fixée sur le hacheur mesure directement cette fréquence, qui constitue la fréquence référence pour la détection synchrone. Ainsi seuls les signaux dépendant des deux faisceaux,

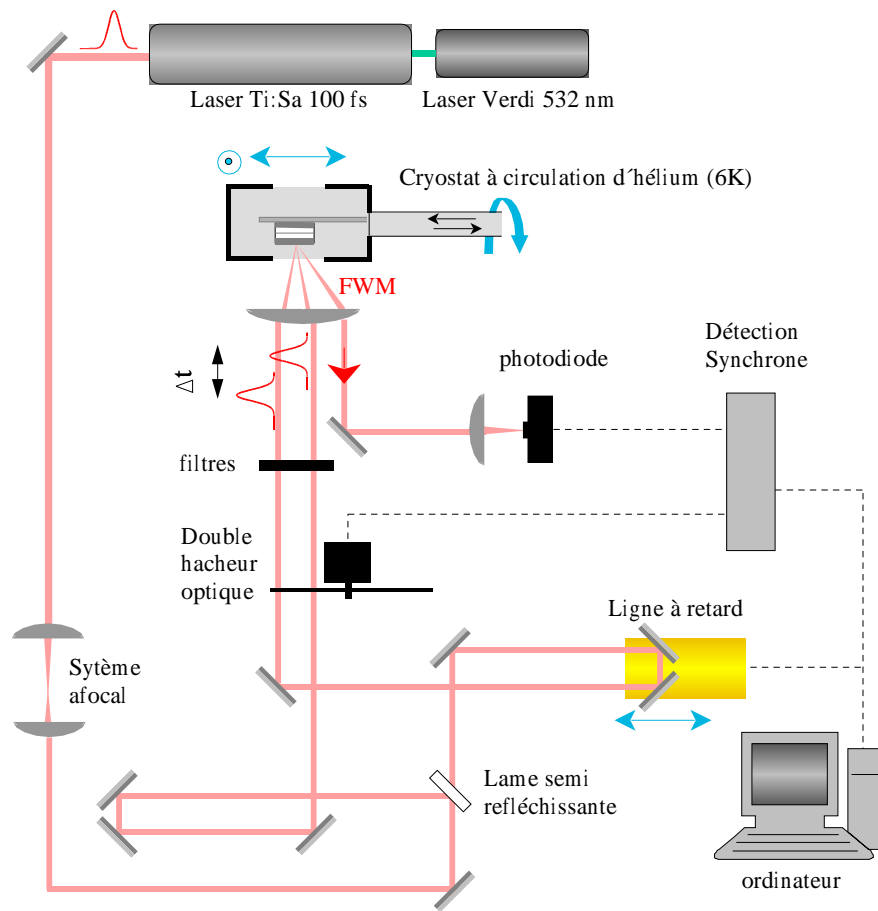


Fig. 3.14: Schéma du montage pour les expériences de mélange à quatre ondes.

qui sont modulés à la fréquence $\omega_1 + \omega_2$ (et aussi $\omega_1 - \omega_2$) seront détectés et amplifiés ; on s'affranchit non seulement des bruits ambiants (comme avec un hacheur simple), mais aussi de la diffusion due à chaque faisceau individuellement.

3.4.2 Mélange à quatre ondes résolu en angle

Nous avons vu au § 3.3.1 que l'échantillon était placé dans un cryostat pouvant pivoter autour de son axe horizontal. La figure 3.15 schématise une situation où le cryostat est incliné d'un angle θ . Les faisceaux incidents, de direction \vec{k}_1 et \vec{k}_2 , se trouvent dans un plan horizontal. Les faisceaux réfléchis sont dans la direction spéculaire, et font un angle entre eux de 1° comme les faisceaux incidents. Le mélange à quatre ondes dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est mesuré en réflexion, donc dans la direction spéculaire. Si l'on fait varier l'angle d'incidence (cf. chap. 5), l'alignement du signal de mélange à quatre ondes dans le système de détection doit être repris pour chaque mesure.

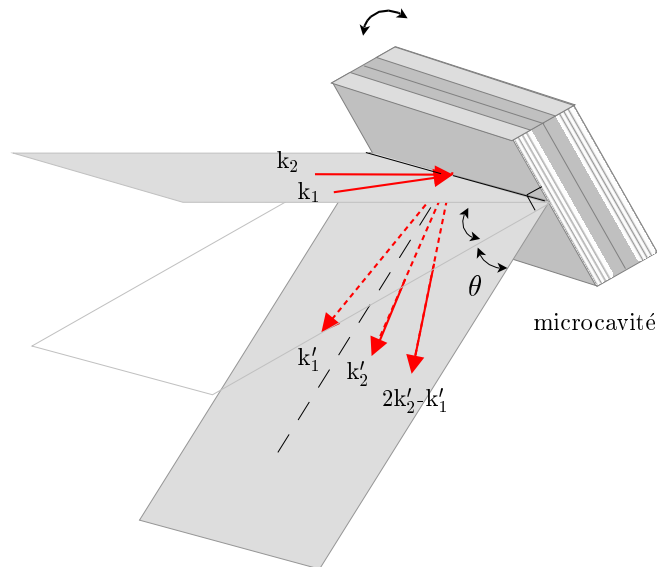


Fig. 3.15: Principe de l'expérience de mélange à quatre ondes en angle : les deux impulsions provenant du laser, de directions \vec{k}_1 et \vec{k}_2 très proches, sont incidentes sur la microcavité avec un angle moyen θ ; les faisceaux sont réfléchis dans la direction spéculaire. Le mélange à quatre ondes de direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est mesuré en réflexion, et la séparation entre les faisceaux étant faibles par rapport à la largeur angulaire du mode de polariton, il forme aussi avec la cavité un angle θ . L'échantillon est en rotation alors que la direction des faisceaux incidents est constante, ce qui permet de faire varier θ .

Dans les chapitres suivants, nous effectuerons des expériences de mélange à quatre ondes dans le cas où les deux faisceaux du laser et le signal de mélange à quatre ondes sont résonants avec le même état de polariton $(E, \vec{k}_{//})$ ou de façon équivalente, (E, θ) .

Avec un tel dispositif expérimental décrit au § 3.4.1, nous allons montrer que les faisceaux incidents et le mélange à quatre ondes forment avec l'échantillon un angle de θ .

θ est l'angle entre le plan orthogonal à la cavité et le plan contenant les faisceaux incidents (ou le plan contenant les faisceaux réfléchis).

D'une part, les faisceaux incidents font un angle avec l'échantillon dont le cosinus vaut $\cos 0,5^\circ \cos \theta \approx \cos \theta$.

D'autre part, l'angle entre la direction moyenne des faisceaux réfléchis (en pointillés sur la fig. 3.15) et le mélange à quatre ondes vaut environ $1,5^\circ$. Aussi le faisceau de mélange à quatre ondes fait un angle β avec la normale de l'échantillon qui vérifie $\cos \beta = \cos 1,5^\circ \cos \theta$.

Nous avons vérifié que la différence entre β et θ était plus faible que la largeur angulaire des polaritons, induite par leur largeur spectrale, et ce sur toute la courbe de dispersion pour le polariton de basse énergie, ou près de l'incidence normale pour le polariton de haute énergie. En effet, la largeur angulaire des polaritons vaut presque 2° à basse puissance.

La géométrie de l'expérience permet ainsi de sonder un état à $\vec{k}_{//}$ donné. Afin d'exciter un seul polariton à cet angle, nous avons utilisé des impulsions de durée assez longue pour être suffisamment sélectif en énergie. Près de l'incidence normale, la séparation des modes est faible (de l'ordre de 14 meV) tandis qu'elle augmente avec l'angle d'incidence (25 meV vers 25°). Nous avons alors varié la durée de l'impulsion de 230 fs à 175 fs, impliquant une largeur spectrale de 8 meV à 10 meV. Nous gardons cependant une bonne résolution temporelle.

En conclusion, avec un montage ainsi conçu de mélange à quatre ondes résolu en angle, les faisceaux incidents et le mélange à quatre ondes sont en résonance avec le même état de polariton.

Il sera ainsi possible de mesurer le temps de cohérence T_2 correspondant à l'état de polariton $(E, \vec{k}_{//})$. Notons que ce temps est une combinaison du temps de vie T_1 de l'état (E, k) et du déphasage pur T_2^* (cf. § 2.2.1) :

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

T_1 n'est pas ici le temps de vie radiatif du polariton, mais mesure le temps de vie du polariton dans l'état k [49]. Le déphasage de temps caractéristique T_2^* est dû à des collisions élastiques, qui ne font pas changer le polariton d'état $(E, |\vec{k}_{//}|)$:

le polariton diffuse sur l'anneau d'énergie constante et de $|\vec{k}_{//}|$ constant (voir les expériences décrites dans les références [105, 106, 107]).

3.4.3 Densité de porteurs injectés

Parallèlement à chaque mesure de mélange à quatre ondes, nous mesurons la réflectivité dans les mêmes conditions d'excitation. Nous pouvons alors estimer la densité de porteurs injectés dans chaque cas, à partir de la réflectivité expérimentale et du calcul de l'absorption par la méthode numérique des matrices de transfert. Cette procédure est détaillée dans l'annexe D.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les caractéristiques des échantillons et détaillé le dispositif expérimental de réflectivité. La caractérisation de nos échantillons par des mesures de réflectivité a permis de constater une bonne qualité de nos échantillons II-VI, et notamment de montrer que l'on pouvait négliger un élargissement inhomogène pour le polariton de basse énergie. Nous avons ensuite décrit le montage expérimental pour les expériences de mélange à quatre ondes. En particulier, nous avons montré comment notre dispositif de mélange à quatre ondes résolu en angle permettait de sonder un seul état de polariton.

Chapitre 4

Détermination expérimentale des non-linéarités intrinsèques

Nous avons vu que le couplage fort entre les photons de la cavité et l'exciton modifie très profondément la dispersion des énergies dans le plan des couches de la microcavité. Ces nouvelles propriétés sont susceptibles d'induire une dynamique cohérente très différente de celle d'un exciton nu. Plus précisément, en centre de zone, la masse des polaritons est beaucoup plus faible, à cause de leur composante photon ; il en est de même pour la densité d'état, plus faible de quatre ordres de grandeur. En conséquence, il a été prédit qu'il devrait être possible d'obtenir un nombre d'occupation de ces états assez grand pour observer des effets bosoniques collectifs avant d'atteindre le seuil de saturation des excitons n_{sat} [22]. En effet, plusieurs expériences ont récemment mis en évidence une dynamique des polaritons qui a été attribuée à leur caractère bosonique : une forte non-linéarité de l'émission du polariton de basse énergie, stimulée au-dessus d'un seuil très inférieur à n_{sat} [26, 108, 92], de la diffusion polariton-polariton stimulée par l'occupation de l'état final en $k = 0$ [27, 28], et la possibilité d'obtenir une pseudo-condensation de Bose-Einstein hors d'équilibre est toujours vivement débattue [33].

Ces différentes expériences ont été interprétées dans le cadre d'approximations bosoniques, dans lesquelles les non-linéarités proviennent essentiellement des interactions coulombiennes entre excitons. Les effets de remplissage des phases, lorsqu'ils sont inclus, n'apparaissent que comme des corrections. Ces nouveaux résultats soulignent l'importance de comprendre au mieux la dynamique non-linéaire des polaritons. Le remplissage de l'espace des phases, les effets de corrélation (corrélation biexcitonique ou déphasage induit par l'excitation) sont à même, tout comme les interactions coulombiennes, d'induire des non-linéarités. Par exemple, Kira *et al.* [25] ont montré pourquoi, dans certaines expériences [24], des effets de corrélations fermioniques électron-trou ont permis d'expliquer des résultats expérimentaux attribués auparavant à de la condensation de polaritons. Dans ce cadre, il serait donc très intéressant de pouvoir accéder expérimenta-

lement aux non-linéarités qui gouvernent la dynamique non-linéaire, pour des conditions d'excitation bien définies.

Ce chapitre présente les expériences de mélange à quatre ondes que nous avons menées afin de mesurer la contribution des différentes non-linéarités intrinsèques à notre système. Nous montrons que cela est possible grâce à une analyse fine des résultats obtenus, à l'aide de la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch pour les semiconducteurs. Nous en déduisons une mesure du poids relatif des interactions coulombiennes et du blocage de Pauli, ce qui nous permettra de faire une comparaison critique avec les expériences mentionnées ci-dessus [109, 110, 111, 112].

4.1 Préliminaires

L'objet de ce paragraphe est de décrire et de discuter les principales caractéristiques des courbes de mélange à quatre ondes obtenues sous excitation en incidence normale, configuration dans laquelle nous restons dans ce chapitre.

4.1.1 Principe de l'expérience

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été menées sur l'échantillon M1159 à la température de 6 K. Nous nous sommes placés en incidence quasi normale. Le dispositif expérimental, exposé au § 3.4.1, permet d'obtenir des faisceaux incidents et un signal de mélange à quatre ondes correspondant à une excitation résonante des polaritons de vecteur d'onde nul.

Dans un premier temps, nous avons excité en même temps et de façon symétrique les deux polaritons, et mesuré le signal de mélange à quatre ondes intégré en temps (Ti-FWM). Pour cela, nous utilisons une impulsion laser courte, de l'ordre de 90 fs ; elle est assez large spectralement pour exciter à la fois le polariton de basse énergie et celui de haute énergie (largeur à mi-hauteur ≈ 20 meV). La figure 4.1 b montre la réflectivité à basse puissance dans les conditions de l'expérience de mélange à quatre ondes : on y voit les creux de réflectivité des deux modes superposés au profil gaussien de l'impulsion. La fréquence centrale du laser est choisie pour que les conditions d'excitation des deux polaritons soient les mêmes.

4.1.2 Description des résultats expérimentaux

La figure 4.1 montre une série de courbes de mélange à quatre ondes intégré en temps pour différentes puissances d'excitation, à un désaccord nul. Les faisceaux sont polarisés colinéairement.

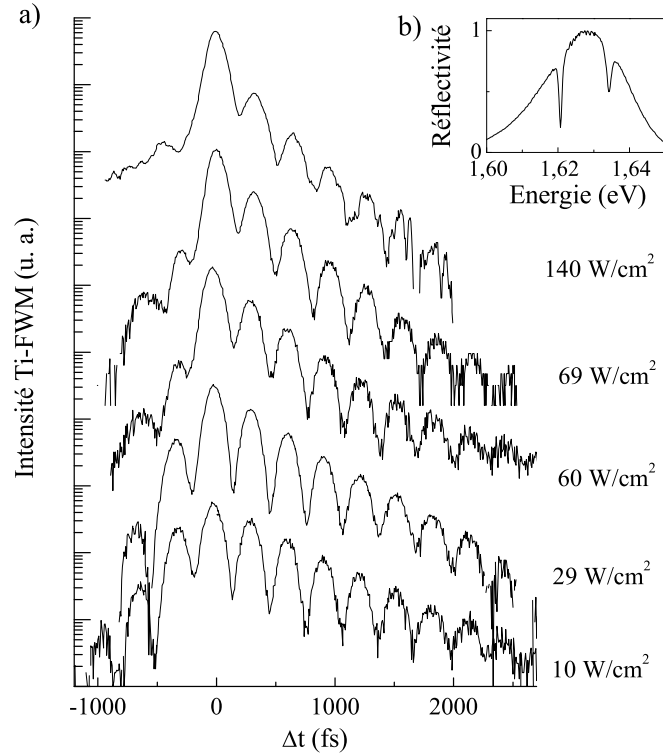


Fig. 4.1: a) : Signal de mélange à quatre ondes intégré en temps pour différentes puissances incidentes, lorsque les deux modes sont excités avec des faisceaux polarisés colinéairement. b) : Réflectivité à basse puissance mesurée dans les mêmes conditions.

Oscillations de Rabi

Comme les deux polaritons sont excités de manière cohérente, le signal présente des oscillations de Rabi, témoins des battements quantiques entre les deux modes. En effet, l'impulsion laser excite une combinaison linéaire des deux polaritons, qui n'est pas un état stationnaire, et dont l'évolution est régie par l'équation de Schrödinger dépendant du temps. L'échange périodique d'énergie entre les deux modes est la manifestation dans le domaine temporel du couplage fort. On peut montrer que la polarisation du troisième ordre oscille avec la période $h/\Delta E$, où ΔE est la séparation en énergie des deux modes et h la constante de Planck. Il en est de même pour le signal de Ti-FWM. C'est un phénomène de battements quantiques.

Les battements quantiques exciton-photon en microcavité ont été mis en évidence dans différents travaux [113] et en particulier dans le mélange à quatre ondes [40, 41, 46, 47]. La période des oscillations du signal de Ti-FWM, $h/\Delta E(\delta)$, où ΔE est la différence d'énergie entre les deux modes, dépendant du désaccord δ (cf. § 4.5.3). Dans le cas présent, à désaccord nul, on déduit de la mesure de la

période une différence d'énergie $\Delta E = 13,5 \text{ meV}$, en accord avec le dédoublement de Rabi mesuré (13,6 meV).

Ce phénomène est à distinguer de simples effets d'interférences, dans le détecteur par exemple, des champs électriques émis par deux systèmes indépendants (qui n'échangent pas d'énergie) et ayant des énergies de transitions voisines. C'est par exemple le cas des champs émis par deux états ne partageant pas un état commun [114]. Il a notamment été montré que certaines caractéristiques du signal de mélange à quatre ondes résolu en temps (Tr-FWM) [114, 42] ou résolu spectralement [115] pouvaient différencier ces deux phénomènes. De même, dans le signal de Ti-FWM, l'intensité due au phénomène d'interférences oscille avec la période $h/2\Delta E$ [41], donc avec une période deux fois plus petite que pour des battements quantiques.

Décroissance exponentielle

L'enveloppe des courbes est exponentielle, à $\Delta t > 0$ ainsi qu'à $\Delta t < 0$ et le temps de déclin, proportionnel au temps de cohérence T_2 , diminue avec la puissance d'excitation (déphasage induit par l'excitation, cf. § 2.3.1). Le temps de montée est environ la moitié du temps de déclin. L'allure de l'enveloppe des courbes est celle du signal de Ti-FWM dans le cas des semiconducteurs (cf. § 2.3.1) pour un système homogène. Le temps de déclin correspond alors à $T_2/2$.

Dans chaque cas, nous déterminons avec précision le temps de cohérence et la période des oscillations en utilisant une simple formule phénoménologique $e^{-2\Delta t/T_2} \cos^2\left(\frac{\Delta E}{2\hbar}\Delta t\right)$ pour reproduire le signal aux retards positifs. La figure 4.2 montre le temps de cohérence mesuré en fonction de la puissance.

4.1.3 Contraste des oscillations

Le contraste des battements dans le signal de Ti-FWM n'est jamais égal à un, mais il est important à basse puissance d'excitation, et diminue à forte puissance d'excitation. Le fait que les modes soient moins marqués et s'élargissent au fur et à mesure que la puissance d'excitation augmente (cf. 2.3.1) pourrait être à l'origine d'une telle réduction de contraste. Cependant, on remarque de plus que cette réduction de contraste est plus prononcée pour les retards Δt négatifs (voir la différence de contraste entre les retards positifs et négatifs sur le signal à partir de 60 W/cm^2). Aux plus fortes puissances, le contraste est réduit à $\Delta t > 0$ et est quasiment nul à $\Delta t < 0$.

C'est l'analyse détaillée de cette variation du contraste qui va nous permettre de déduire des informations très importantes sur la nature des non-linéarités gouvernant la dynamique cohérente des polaritons.

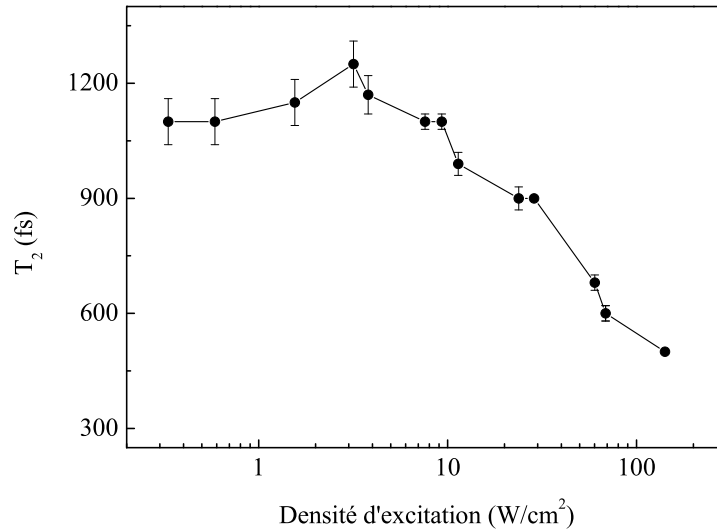


Fig. 4.2: Temps de cohérence T_2 en fonction de la densité d'excitation, déduit de la décroissance du signal de mélange à quatre ondes.

4.2 Modélisation

Nous allons analyser ces résultats et en particulier le contraste des battements sur la base du modèle de polarisation présenté au § 2.3.2, que nous adapterons au cas des microcavités. Pour cela nous précisons dans un premier temps les hypothèses dont nous avons besoin pour définir le cadre théorique du modèle. Il s'agit en particulier de savoir s'il faut inclure des effets biexcitoniques, ou des effets d'inhomogénéité. Nous présentons ensuite le modèle, et discutons les équations qui permettront de calculer le signal de mélange à quatre ondes. En particulier, nous décrivons les termes sources des non-linéarités et les paramètres ajustables.

4.2.1 Discussion des hypothèses

Effets biexcitoniques

Comme nous l'avons vu au § 2.3.2, on peut exciter des biexcitons lorsque les impulsions laser sont polarisées linéairement. Dans les microcavités, des effets biexcitoniques ont été mis en évidence dans différents travaux. L'influence du biexciton sur le couplage fort a notamment été observée grâce à des expériences de pompe-sonde, se traduisant par une augmentation du dédoublement de Rabi [116], des oscillations particulières dans le domaine spectral [84], ou une transition optique associée à l'absorption du polariton de basse énergie vers le biexciton [117]. Dans certaines conditions, le couplage fort de la cavité avec le biexciton peut exister, donnant lieu à la formation à haute puissance d'un doublet polariton-biexciton [118]. L'efficacité de diffusion de polaritons est accrue

lorsqu'une transition intermédiaire via le biexciton est possible [30]. Fu *et al.* ont calculé le mélange à quatre ondes dans des microcavités, et en particulier lorsque la non-linéarité était due à des mécanismes biexcitoniques [44]. Dans le spectre de mélange à quatre ondes, des pics supplémentaires battant à une fréquence différente de celle des battements entre les deux polaritons ont été attribués à des mécanismes biexcitoniques [119]. Enfin, des études de mélange à quatre ondes dans le domaine spectral montrent des corrélations à plusieurs particules, dont le biexciton [120, 121].

Afin de connaître le rôle éventuel joué par le biexciton dans notre expérience, nous avons étudié l'effet de la polarisation de l'excitation lumineuse. Nous avons répété l'expérience avec des faisceaux polarisés circulairement. La figure 4.3 montre le signal de Ti-FWM mesuré (sur le même point) dans deux configurations : le cas où les deux faisceaux d'excitation ont la même polarisation circulaire, et le cas où ils ont des polarisations circulaires contraires. Ainsi que nous l'avons discuté au § 2.3.2, l'excitation en configuration contre-circulaire permet de mesurer le poids de la contribution du biexciton aux non-linéarités, qui se révèle plus faible ici (de deux ordres de grandeur) que celles des contributions excitoniques. La contribution des biexcitons au signal de Ti-FWM est ainsi négligeable.

D'autre part, nous avons reproduit l'expérience complète, c'est-à-dire la mesure du signal de Ti-FWM en fonction de la puissance incidente, lorsque les faisceaux ont la même polarisation circulaire. La figure 4.4 présentent les résul-

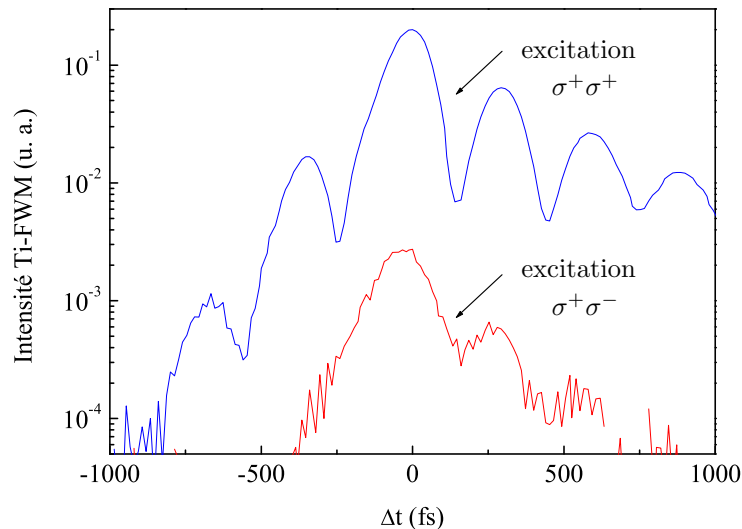


Fig. 4.3: Signal de Ti-FWM lorsque les deux modes sont excités à une densité d'excitation de 20 W/cm^2 (à un désaccord légèrement négatif). La courbe d'intensité plus élevée correspond à une excitation par deux impulsions ayant des polarisations cocirculaires ($\sigma^+\sigma^+$), la courbe la plus faible, par deux impulsions possédant des polarisations circulaires opposées ($\sigma^+\sigma^-$).

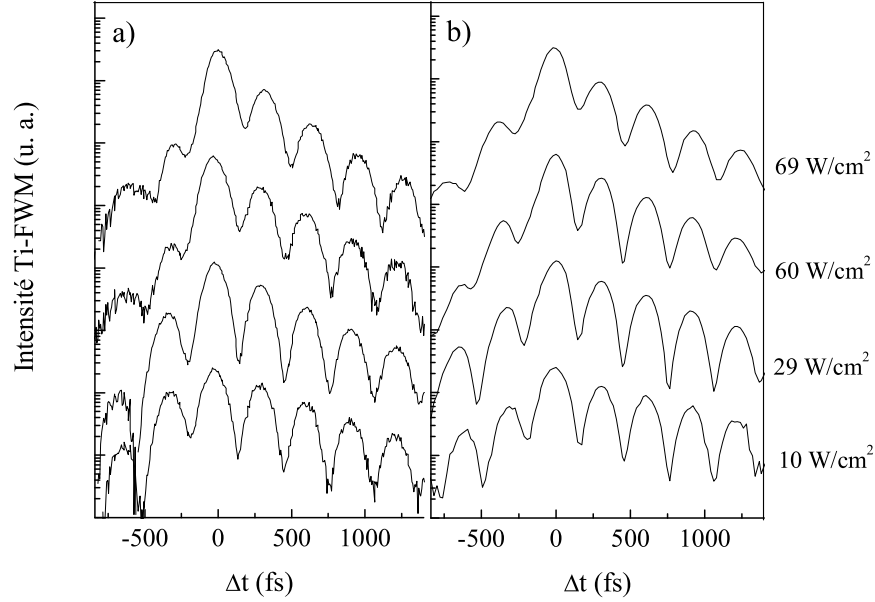


Fig. 4.4: Signal de Ti-FWM lorsque les deux polaritons sont excités, à désaccord nul, a) : pour des impulsions de polarisations colinéaires, et b) : pour des impulsions de polarisations cocirculaires ($\sigma^+\sigma^+$). Les densités d'excitation sont indiquées à droite pour ces deux configurations.

tats : on retrouve les mêmes caractéristiques pour une configuration cocirculaire ou colinéaire, en particulier en ce qui concerne la variation du contraste avec la puissance (à $\Delta t > 0$ par rapport à $\Delta t < 0$).

Nous pouvons en conclure que les biexcitons jouent un rôle négligeable dans nos expériences, d'autant plus que des spectres de notre signal de mélange à quatre ondes n'ont pas révélé d'autres raies que celles des polaritons, contrairement au cas de [119].

Inhomogénéité

Des travaux récents ont montré que l'inhomogénéité pouvait influencer sur le contraste des battements dans le signal de mélange à quatre ondes. Bongiovanni *et al.* ont étudié le rôle de l'inhomogénéité dans le signal de transmission, de Tr-FWM et de Ti-FWM, en excitant les deux polaritons [46]. Dans leur cas, l'élargissement de l'exciton est très inhomogène : le rapport du dédoublement de Rabi sur la largeur de raie de l'exciton est faible ($\Omega/\gamma_x \approx 1,7$) ; le signal de Ti-FWM présente des oscillations peu marquées. Ils montrent que le contraste des oscillations diminue lorsque l'inhomogénéité augmente. Lorsque celle-ci est très grande (largeur de 5,5 meV, et $\Omega = 7,8$ meV), le signal de Ti-FWM augmente très rapidement aux retards négatifs, tandis qu'aux retards positifs, il décroît avec la

constante de temps $T_X/4$, où T_X est le temps de cohérence de l'exciton (comme dans le cas de puits quantiques inhomogènes [50]); les oscillations sont très peu visibles et disparaissent très vite. Lorsque le système est homogène, le signal oscille avec un contraste plus grand; il augmente et décroît exponentiellement avec un temps de déclin deux fois plus long que le temps de montée (également comme dans les puits quantiques [71, 50]).

Cependant dans notre cas, l'inhomogénéité n'est pas *a priori* à l'origine de la diminution de contraste. En effet, d'après § 3.3.5, les polaritons (sauf le polariton de haute énergie à basse puissance) sont élargis de manière homogène. De plus, le temps de déclin du signal de Ti-FWM est environ deux fois plus long que le temps de montée, caractéristique d'un système homogène comme on vient de le voir [46]. Nous avons constaté que le temps de cohérence correspond aux largeurs spectrales mesurées en réflectivité à la même puissance. Ainsi, à basse puissance, la largeur du polariton de haute énergie est de 1,5 meV, celle du polariton de basse énergie vaut 0,9 meV, ce qui fait une moyenne de $\gamma = 1,2$ meV correspondant bien aux valeurs de temps de cohérence de l'ordre de 1200 fs ($2\hbar/T_2 = \gamma$). Enfin, dans nos expériences, le contraste est réduit pour des densités d'excitation assez grandes. Or on sait que la transition excitonique tend à s'homogénéiser lorsque la densité de porteurs augmente, puisque la largeur homogène s'élargit et prend plus d'importance vis à vis de la largeur inhomogène constante.

Conclusion

Nous pouvons ainsi considérer que les polaritons résultent d'un couplage avec des excitons homogènes. Nous allons, dans les prochains paragraphes, calculer le signal de Ti-FWM pour un système où l'exciton est élargi de manière homogène. L'analyse est fondée sur le modèle de polarisation effective généralisée exposé au § 2.3.2. Comme les résultats expérimentaux ne sont pas sensibles à l'existence du biexciton, nous nous placerons dans le cadre d'une excitation $\sigma^+ \sigma^+$. Dans ce cas, les équations 2.18 et 2.19 se réduisent à une équation pour la polarisation P^+ (la polarisation pour l'excitation σ^+), semblable formellement à l'équation d'évolution de la polarisation en champ moyen (cf. éq 2.19).

4.2.2 Équations de Maxwell-Bloch

Le signal de mélange à quatre ondes (Tr-FWM) est proportionnel au carré du module de la polarisation d'ordre 3, $|P^{(3)}(t)|^2$. Nous allons calculer cette quantité à partir des équations 2.18 et 2.19 établies au § 2.3.2, qui décrivent l'évolution due aux excitons de la polarisation effective dans le milieu. Afin de tenir compte du couplage fort des excitons avec la lumière, nous allons y ajouter une équation couplée pour le champ électrique à l'intérieur de la cavité [84, 86]. Nous détaillons ensuite comment le calcul est développé et quels sont les paramètres qui entrent en jeu.

Équations pour la polarisation et le champ électrique

Dans la situation où l'excitation est constituée de deux faisceaux polarisés cocirculairement σ^+ , la polarisation P^- est évidemment nulle. La transition vers le biexciton n'étant pas possible, la fonction de corrélation B est nulle également. Dans le modèle de la polarisation effective généralisée, l'équation 2.18 d'évolution de la polarisation P^+ se réduit à :

$$\begin{aligned} \frac{dP^+}{dt} = & \left(i\omega_x - \frac{1}{T_2^X} \right) P^+ + \frac{\kappa E}{i\hbar} \left(1 - \frac{|P^+|^2}{|P_s^+|^2} \right) \\ & - \frac{1}{i\hbar} (V + V_{XX}^{\text{exch}} - V_{XX}^{\text{screen}}) P^+ |P^+|^2 \end{aligned}$$

avec P_s le paramètre de saturation, V le potentiel coulombien effectif, V_{XX}^{exch} l'interaction d'échange, V_{XX}^{screen} l'écrantage des interactions coulombiennes et ω_x un paramètre qui rend compte de l'énergie de la transition excitonique en présence des interactions. Nous posons : $\hbar/T_2^X = \gamma_{\text{px}}$; en effet, cette largeur γ_{px} correspond au taux d'amortissement pour la polarisation. L'intensité étant homogène au carré du module de la polarisation, la largeur de la raie excitonique est $\gamma_x = 2\gamma_{\text{px}}$.

Formellement, on retrouve l'équation de la polarisation effective dans l'approximation du champ moyen, mais le potentiel coulombien comprend en plus l'interaction d'échange et l'écrantage. Nous posons pour toute la suite V pour l'ensemble des potentiels coulombiens, et omettons l'exposant « + » pour la polarisation.

Ainsi, l'équation pour la polarisation a la forme d'une équation d'oscillateur amorti, couplée avec le champ (terme dipolaire $\kappa E = \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E}$), à laquelle sont ajoutés deux termes, sources des non-linéarités : le terme $\kappa E |P|^2 / |P_s|^2$, traduisant le remplissage de l'espace des phases, qui diminue la force du couplage avec le champ, et le terme $VP|P|^2$ représentant les interactions coulombiennes (potentiel moyen, d'échange et d'écrantage).

Pour tenir compte des effets de la cavité, qui d'une part confine le champ électrique, et d'autre part, induit un couplage fort des photons avec les excitons, nous procédons comme Neukirch *et. al.* [84]. Le champ électrique intracavité est modélisé par une équation d'oscillateur amorti, d'énergie de résonance $\hbar\omega_c$ correspondant à l'énergie de la cavité, et de facteur d'amortissement γ_{ec} . L'intensité étant proportionnelle au carré du module du champ, γ_{ec} correspond à la moitié de la largeur spectrale du mode de cavité γ_c . D'autre part, le champ électrique est couplé à la polarisation et g est la constante de couplage avec le champ électrique extérieur, constitué par les deux impulsions laser. L'équation pour le champ électrique intracavité est alors :

$$\frac{dE}{dt} = \left(i\omega_c - \frac{\gamma_{\text{ec}}}{\hbar} \right) E + \frac{\kappa P}{i\hbar} + gE_{\text{ext}}$$

En posant pour toutes les variables (comme dans l'annexe A) $X = X(t) e^{i\omega_0 t}$ où $X(t)$ est l'enveloppe temporelle et ω_0 la pulsation centrale des impulsions laser,

nous obtenons le système d'équations couplées suivant (E_{ext} est alors l'enveloppe temporelle du champ électrique des impulsions incidentes sur la cavité) :

$$\begin{cases} \frac{dP}{dt} = \left(i(\omega_x - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{px}}}{\hbar} \right) P - \frac{i\kappa E}{\hbar} \left(1 - \frac{|P|^2}{|P_s|^2} \right) + \frac{i}{\hbar} V P |P|^2 \\ \frac{dE}{dt} = \left(i(\omega_c - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{ec}}}{\hbar} \right) E - \frac{i\kappa P}{\hbar} + g E_{\text{ext}} \end{cases} \quad (4.1)$$

Développement des équations à l'ordre 3

Comme dans le cas des systèmes à deux niveaux (cf. § 2.2.2), nous traitons le champ électrique extérieur comme une perturbation, et nous allons développer chaque variable en série jusqu'à l'ordre 3 en champ. Les ordres 0 et 2 sont nuls pour le champ intracavité et la polarisation. Nous voulons obtenir l'équation pour la polarisation à l'ordre 3 dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, responsable de l'un des deux signaux de mélange à quatre ondes. Pour cela, il est nécessaire de considérer l'ordre 1 dans la direction des impulsions \vec{k}_1 et \vec{k}_2 . Le développement des équations 4.1 résulte en six équations couplées, quatre à l'ordre 1 et deux à l'ordre 3 :

$$\begin{cases} \frac{dP_{k_1/k_2}^{(1)}}{dt} = \left[i(\omega_x - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{px}}}{\hbar} \right] P_{k_1/k_2}^{(1)} - \frac{i\kappa}{\hbar} E_{k_1/k_2}^{(1)} \\ \frac{dE_{k_1/k_2}^{(1)}}{dt} = \left[i(\omega_c - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{ec}}}{\hbar} \right] E_{k_1/k_2}^{(1)} - \frac{i\kappa}{\hbar} P_{k_1/k_2}^{(1)} + g E_{k_1/k_2}^{\text{ext}} \end{cases} \quad (4.2)$$

$$\begin{cases} \frac{dP_{2k_2-k_1}^{(3)}}{dt} = \left[i(\omega_x - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{px}}}{\hbar} \right] P_{2k_2-k_1}^{(3)} - i \frac{\kappa}{\hbar} E_{2k_2-k_1}^{(3)} \\ \quad + \frac{i\kappa}{\hbar} E_{k_2}^{(1)} \frac{P_{k_2}^{(1)} P_{k_1}^{(1)*}}{P_s^2} + \frac{i}{\hbar} V P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)} P_{k_1}^{(1)*} \\ \frac{dE_{2k_2-k_1}^{(3)}}{dt} = \left[i(\omega_c - \omega_0) - \frac{\gamma_{\text{ec}}}{\hbar} \right] E_{2k_2-k_1}^{(3)} + \frac{\kappa}{i\hbar} P_{2k_2-k_1}^{(3)} \end{cases} \quad (4.3)$$

Paramètres des équations

Le système d'équations 4.2 et 4.3 comprend des paramètres qui sont ajustés de la manière suivante.

Champ extérieur Le champ extérieur est modélisé par deux impulsions, dont le profil temporel est gaussien, de largeur gaussienne de 100 fs (largeur à mi-hauteur de 118 fs). g représente le couplage de la cavité avec l'extérieur (c'est-à-dire la transmission, qui est environ de 0,02). Mais les intensités sont ici arbitraires et la valeur de cette constante importe peu.

Énergies de résonance et de couplage L'énergie centrale de l'impulsion $\hbar\omega_0$ est mesurée sur le spectre du laser. Les énergies de l'exciton $\hbar\omega_x$ et du mode de cavité $\hbar\omega_c$ se déduisent de la courbe d'anticroisement à partir de la position sur l'échantillon (cf. § 3.3.2); on recoupe cette information avec la réflectivité à basse puissance qui est toujours mesurée et dont la comparaison avec le calcul par matrices de transfert donne les énergies de l'exciton et du mode de cavité.

Le paramètre κ , qui représente l'énergie de couplage, correspond à la moitié du dédoublement de Rabi ($\kappa = 13,5/2$ meV).

Largeurs de la cavité et de l'exciton Le paramètre γ_{ec} est le taux d'amortissement du champ électrique à l'intérieur de la cavité, et correspond à la moitié de la largeur à mi-hauteur du mode de cavité, qui sera toujours prise égale à 0,9 meV (cf. § 3.1.1 et 3.3.4).

Le paramètre γ_{px} est le taux d'amortissement de la polarisation et correspond de même à la moitié de la largeur spectrale de l'exciton γ_x . La largeur homogène de l'exciton lourd dans nos puits est de $\gamma_x^0 = 0,15$ meV (cf. 3.1.3). Nous voulons tenir compte phénoménologiquement du déphasage induit par l'excitation (cf. 2.3.1), c'est-à-dire de l'élargissement dû à l'augmentation de la densité de porteurs donc à la puissance d'excitation. Chaque impulsion laser élargit successivement la transition excitonique. Nous supposons donc que γ_{px} augmente après l'arrivée de chaque impulsion. Pour être plus précis, puisque les impulsions laser ont une largeur finie, nous supposons que l'augmentation de γ_{px} à l'arrivée de chaque impulsion se fait avec un temps de montée correspondant au temps de construction rapide de la polarisation à l'intérieur de la cavité, qui est de l'ordre de la durée de l'impulsion laser comme nous le verrons au § 4.3.1. La figure 4.5 montre l'allure de γ_{px} en fonction du temps : avant l'arrivée de la première impulsion (en $t = 0$), $\gamma_{px} = \gamma_x^0/2 \approx 0,15/2$ meV; puis chaque impulsion induit une augmentation de γ_{px} , dont la variation est modélisée phénoménologiquement par une fonction $1 + \frac{1}{2} \tanh(\frac{t-150}{50})$. La valeur finale de γ_{px} est ajustée à l'aide du temps de déclin expérimental du signal de Ti-FWM (cela sera revu au § 4.3.3).

N. B. : les résultats numériques que nous avons obtenus (décrits au § 4.3.3) sont qualitativement les mêmes si nous ne tenons pas compte du déphasage induit par l'excitation, et si nous prenions pour γ_{px} une valeur constante ajustée uniquement par le déclin expérimental des courbes de Ti-FWM.

Termes sources des non-linéarités Les paramètres qui interviennent dans les termes responsables des non-linéarités sont la polarisation de saturation P_s , et la force des interactions coulombiennes V . Cette dernière n'est pas connue *a priori* et peut varier en fonction des conditions d'excitation (par exemple, l'écrantage dépend de la densité de porteurs). La polarisation de saturation P_s est liée à la saturation de l'exciton. Nous verrons comment nous allons accéder à la valeur relative de ces deux non-linéarités au § 4.3.4.

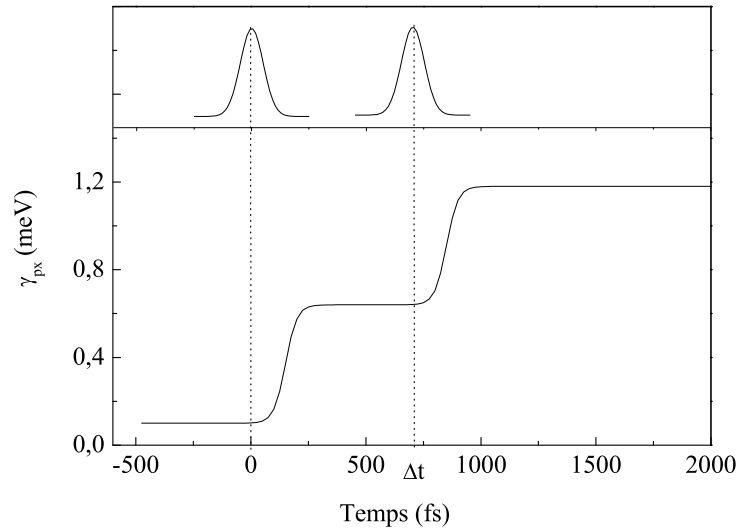


Fig. 4.5: Allure de γ_{px} en fonction du temps. Les deux impulsions laser (de direction \vec{k}_1 et \vec{k}_2) sont aussi représentées, correspondant à des gaussiennes de largeur gaussienne $\sigma_g = 100$ fs (largeur à mi-hauteur de 118 fs).

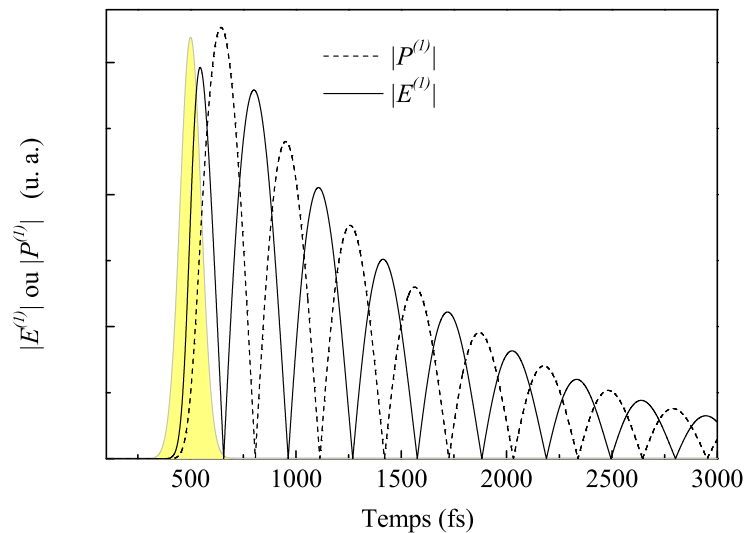


Fig. 4.6: Allure de la polarisation et du champ d'ordre 1 (valeur absolue de l'enveloppe temporelle) dans une direction (ici \vec{k}_2) en fonction du temps. L'impulsion laser excitatrice, (arrivant ici à $\Delta t = 500$ fs) est représentée en grisé (intensité arbitraire).

4.3 Résultats numériques

Ce système couplé de six équations 4.2 et 4.3 se résout numériquement. On peut calculer le champ et la polarisation aux différents ordres en fonction du temps, et en déduire le signal de Ti-FWM qui nécessite une intégration du carré du module de la polarisation d'ordre 3 à chaque retard Δt .

Dans ce paragraphe, nous présentons quelques résultats physiques apportés par ce calcul. Par souci de simplicité, nous nous plaçons ici à un désaccord nul. Les impulsions laser ont une durée de 100 fs, et sont en résonance avec l'exciton et la cavité. Les deux modes de polaritons sont alors excités de façon symétrique, comme dans l'expérience. Nous montrons comment se construisent le champ électrique et la polarisation dans la cavité. Nous étudions les effets des paramètres sur le signal de Tr-FWM et de Ti-FWM. En particulier, nous regardons comment est affecté le contraste des oscillations du signal de Ti-FWM.

4.3.1 Évolution temporelle à l'ordre 1

Les équations (4.2) pour le champ électrique et la polarisation d'ordre 1 sont celles de deux oscillateurs couplés, et on retrouve l'existence de deux modes propres, les polaritons, séparés énergétiquement du dédoublement de Rabi 2κ à la résonance.

Le champ électrique à l'ordre 1 dans la cavité est formé de la somme du champ électrique d'ordre 1 dû à la première impulsion, et celui dû à la seconde impulsion. La cavité filtrant spectralement l'impulsion, le champ intracavité est élargi temporellement et subsiste plus longtemps que les impulsions. Chaque champ électrique d'ordre 1 donne naissance à une polarisation d'ordre 1, qui se construit alors avec un retard de l'ordre de la largeur de l'impulsion. La figure 4.6 montre les enveloppes temporelles du champ intracavité et de la polarisation dus à une impulsion. Puisque les deux modes de polaritons sont excités, nous retrouvons des battements quantiques : la polarisation (liée à l'exciton) et le champ (lié au mode de cavité) oscillent en opposition de phase, avec une période correspondant à la différence d'énergie entre les modes, égale à $h/2\kappa$. Les polaritons sont, à désaccord nul, moitié exciton, moitié photon et leur largeur γ_{moy} est la moyenne des largeurs de l'exciton (valeur après les deux impulsions) et de la cavité. Il est important de remarquer qu'en conséquence, les deux courbes décroissent avec le même temps de déclin, qui correspond au temps de déphasage T_2 moyen égal à $T_2^{\text{moy}} = 2\hbar/\gamma_{\text{moy}}$.

4.3.2 Évolution temporelle à l'ordre 3

Le champ et la polarisation d'ordre 3 (représentée sur la figure 4.7) dans la direction du mélange à quatre ondes n'apparaissent qu'après l'arrivée de la seconde impulsion, et mettent un certain temps pour se construire. Elles présentent

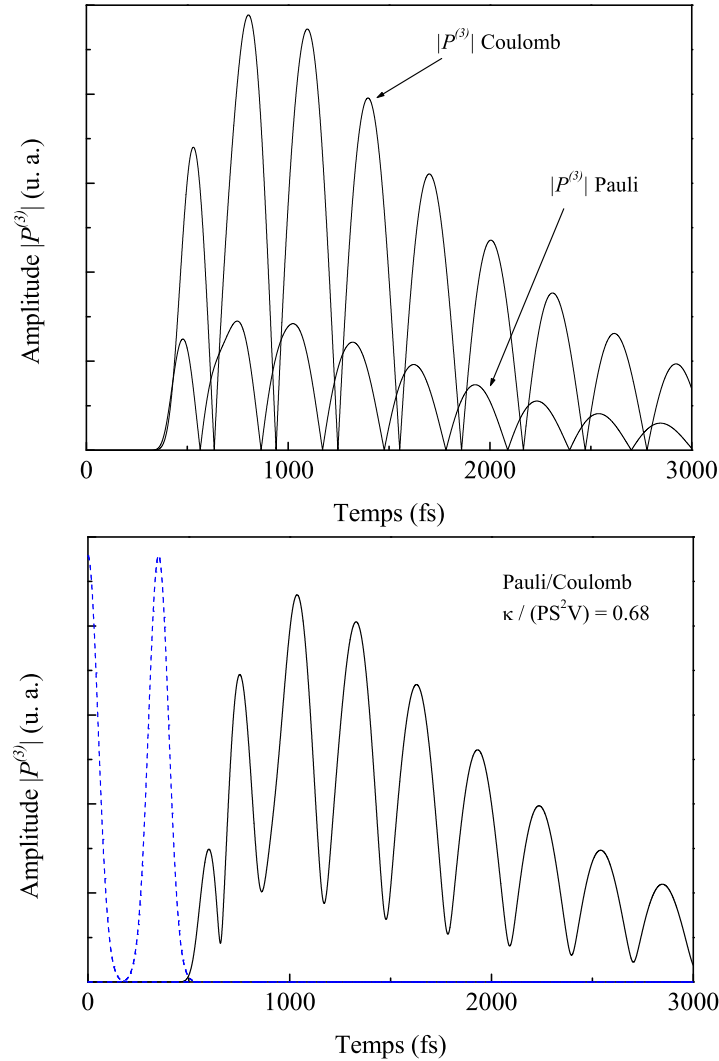


Fig. 4.7: Allure de la polarisation d'ordre 3 $|P_{2k_2-k_1}^{(3)}|$ (valeur absolue de l'enveloppe temporelle) en fonction du temps. Les deux impulsions laser arrivent à $t=0$ et à $\Delta t = 350$ fs et sont représentées en pointillés sur la figure du bas (intensité arbitraire). Figure du haut : cas où seules les interactions coulombiennes interviennent, et où seul le blocage de Pauli est présent. Figure du bas : cas où les deux non-linéarités sont présentes (blocage de Pauli par rapport aux interactions coulombiennes $\kappa/(P_s^2 V) = 0,68$).

les mêmes caractéristiques que pour l'ordre 1 en ce qui concerne la dépendance temporelle (oscillations, déphasage entre les deux quantités, et décroissance de l'enveloppe exponentielle). L'allure de ces quantités est semblable quelqu'en soit l'origine, les interactions de Coulomb ou le blocage de Pauli (cf fig. du haut 4.7). Pour cela, nous annulons artificiellement l'un ou l'autre terme source et calculons

les quantités d'ordre 3 uniquement dues au blocage de Pauli (cas où $V = 0$) ou aux interactions coulombiennes (cas où $P_s = \infty$). Cependant, il existe un déphasage (dépendant de Δt) entre la polarisation due au blocage de Pauli et celle due aux interactions de Coulomb. Il en est de même pour le champ. On peut ainsi comprendre que lorsque les deux sources de non-linéarités sont présentes, les variables d'ordre 3 oscillent avec un contraste moins grand (cf fig. du bas 4.7).

4.3.3 Ti-FWM dû à chaque non-linéarité

L'intégration dans le temps du carré du module de la polarisation d'ordre 3 donne l'allure du signal de Ti-FWM (cf. éq. 2.8). La figure 4.8 montre le résultat du calcul pour chaque non-linéarité.

Nous remarquons d'abord que le signal de Ti-FWM existe aux retards négatifs dans les deux cas, même pour le signal dû seulement au blocage de Pauli, contrairement au cas des puits quantiques (cf. § 2.2.2). La raison est que le champ électrique qui intervient dans le terme source n'est plus une impulsion courte, mais c'est le champ intracavité qui décroît avec la constante de temps T_2^{moy} (cf. § 4.3.1), et qui peut être diffracté par le réseau de population même aux retards négatifs (comme c'est le cas uniquement pour la polarisation dans les puits quantiques). L'enveloppe temporelle du champ électrique et de la polarisation d'ordre 1 sont les mêmes, le terme source des non-linéarités dues au blocage de Pauli $E_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)} P_{k_1}^{(1)*}$

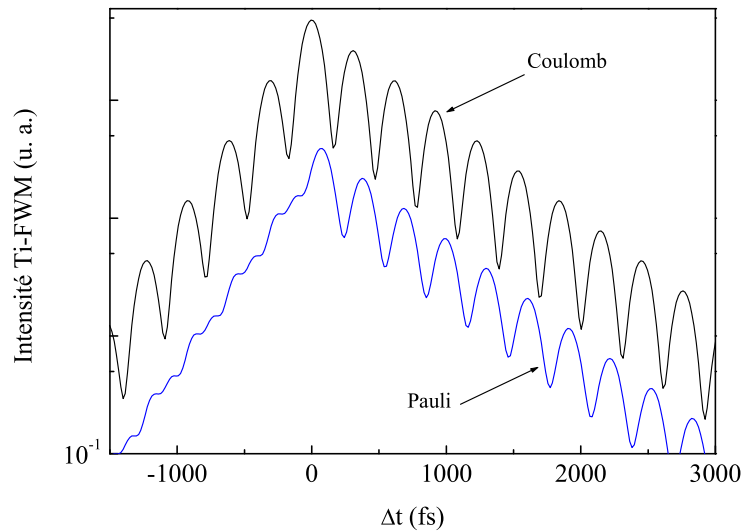


Fig. 4.8: Signal de Ti-FWM en fonction du retard entre les deux impulsions. « Coulomb » (resp. « Pauli ») indique le signal de Ti-FWM uniquement dû aux interactions coulombiennes (resp. au blocage de Pauli) ($P_s = \infty$) (resp. $V = 0$).

et celui des non-linéarités dues aux interactions coulombiennes $P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)} P_{k_1}^{(1)*}$ ont la même enveloppe. C'est pourquoi le signal de Ti-FWM dû aux interactions coulombiennes et celui dû au remplissage de l'espace des phases ont aussi la même enveloppe. Celle-ci décroît exponentiellement aux retards positifs et croît exponentiellement pour $\Delta t < 0$ avec un temps de montée deux fois plus rapide, pour les mêmes raisons que dans le cas des interactions coulombiennes dans les puits quantiques (cf. § 2.3.1, raisons que nous reverrons au § 4.3.4).

Nous retrouvons les battements quantiques dans le signal de Ti-FWM. Si l'enveloppe du signal est la même pour les deux types de non-linéarités, en revanche, le contraste des oscillations est différent. En effet, le contraste est grand et constant dans le signal dû aux interactions coulombiennes, tandis que dans le cas du blocage de Pauli, il est fortement diminué pour les retards négatifs.

Un léger déphasage est également observé entre les deux courbes de Ti-FWM. H. Wang *et al.* [45] ont effectivement observé que la phase des oscillations pouvait être différente selon l'origine des non-linéarités. On retrouve bien ce résultat dans notre modèle.

Remarque sur l'effet du déphasage induit par l'excitation.

Notons que le temps de déclin n'est pas ici exactement égal à $T_2^{\text{moyen}}/2$, parce que le taux de relaxation $\gamma_{\text{px}}(t)$ n'est plus une constante (cf. § 4.2.2).

4.3.4 Contraste du signal de Ti-FWM

Il est intéressant de comprendre l'origine de cette différence de comportement du contraste, lorsque les non-linéarités sont dues aux interactions coulombiennes ou au blocage de Pauli.

Nous détaillons cette analyse dans l'annexe C. En résumé, comme on l'a vu dans le cas du mélange à quatre ondes dans les puits quantiques (cf. § 2.3.1), l'intensité du signal de Ti-FWM est liée au maximum du terme source des non-linéarités. Plus le terme source est grand, plus l'intensité du signal de Ti-FWM est importante.

Le terme source traduisant le blocage de Pauli est $P_{k_1}^{(1)*} P_{k_2}^{(1)} E_{k_2}^{(1)}$. Or celui-ci peut se décomposer en un terme dû à la première impulsion, $P_{k_1}^{(1)*}$, et un terme dû à la seconde, $P_{k_2}^{(1)} E_{k_2}^{(1)}$. On montre qualitativement que pour $\Delta t > 0$, l'amplitude du terme source varie avec le retard comme $P_{k_1}^{(1)*}(t)$, partie due à la première impulsion. Aussi, le signal de Ti-FWM présente des oscillations de Rabi dont l'amplitude décroît exponentiellement. Dans le cas des retards négatifs, c'est la variation temporelle du terme dû à la seconde impulsion qui intervient, $P_{k_2}^{(1)} E_{k_2}^{(1)}(t)$; or le champ et la polarisation d'ordre 1 n'oscillent pas en phase, ce qui engendre pour l'intensité du signal de Ti-FWM une réduction du contraste des oscillations, tandis que la période des oscillations est divisée par deux. Le temps caractéristique de montée est par ailleurs la moitié du temps de déclin, car ici deux décroissances entrent en jeu.

Pour les interactions coulombiennes, le terme source n'est composé que de termes oscillant en phase. Le contraste est le même pour tous les retards.

4.3.5 Conclusion

En conclusion, lorsque les deux polaritons sont excités, le signal de Ti-FWM présente des oscillations de Rabi dont l'amplitude présente une décroissance exponentielle et une montée exponentielle deux fois plus rapide. Le temps caractéristique de déclin est uniquement dû à la largeur spectrale homogène de l'exciton, et celle de la cavité. Le contraste de ces oscillations se révèle être gouverné par la nature des non-linéarités. Le blocage de Pauli faisant intervenir des termes déphasés l'un par rapport à l'autre, le contraste pour les retards négatifs est fortement réduit par rapport aux retards positifs, ce qui n'est pas le cas pour les interactions coulombiennes. Nous allons nous servir de cette différence de comportement pour analyser le contraste des oscillations des courbes expérimentales, en jouant sur le poids relatif de ces non-linéarités.

4.4 Comparaison théorie-expérience

Nous allons dans ce paragraphe appliquer le modèle précédent pour analyser les résultats expérimentaux exposés au § 4.1. Nous avons vu comment les paramètres étaient fixés (cf. § 4.2.2), et en particulier, comment le contraste des oscillations de Rabi était influencé par le poids relatif des non-linéarités (cf. § 4.3.3). Nous allons montrer que nous pouvons déterminer le rapport des non-linéarités intrinsèques, ici les interactions coulombiennes et le blocage de Pauli, en fonction de la puissance d'excitation ou de la densité de porteurs. Nous montrerons que le remplissage de l'espace des phases, souvent négligé, est très important dans une certaine plage de densité d'excitation, même en couplage fort.

4.4.1 Ajustement des courbes expérimentales

Nous modélisons les résultats exposés au § 4.1, c'est-à-dire les courbes de Ti-FWM pour différentes puissances d'excitation. Les paramètres libres que l'on ajuste à chaque courbe pour une intensité d'excitation donnée sont donc (i) la largeur finale γ_{px} déterminée grâce à l'ajustement du déclin du signal de Ti-FWM, et (ii) les paramètres P_s et V dont le rapport est déterminé par l'ajustement du contraste des oscillations de Rabi des courbes de Ti-FWM.

La figure 4.9 montre deux exemples d'ajustement, un à basse puissance et un à haute puissance ; un très bon accord est obtenu. Lorsque la puissance d'excitation augmente, les temps de déclin diminuent et la largeur finale γ_{px} doit augmenter en conséquence. La figure 4.10 montre l'ensemble des résultats, d'une part les résultats expérimentaux, en configuration colinéaire et cocirculaire, et la

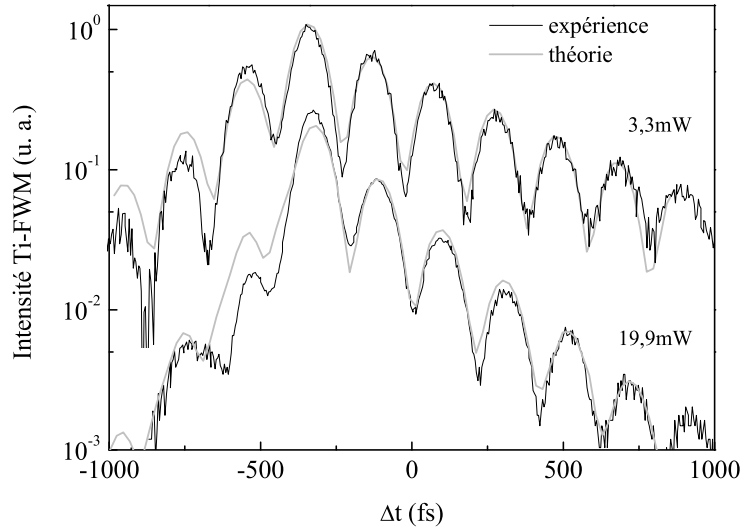


Fig. 4.9: Exemples de deux ajustements de signaux de Ti-FWM à basse puissance et à haute puissance.

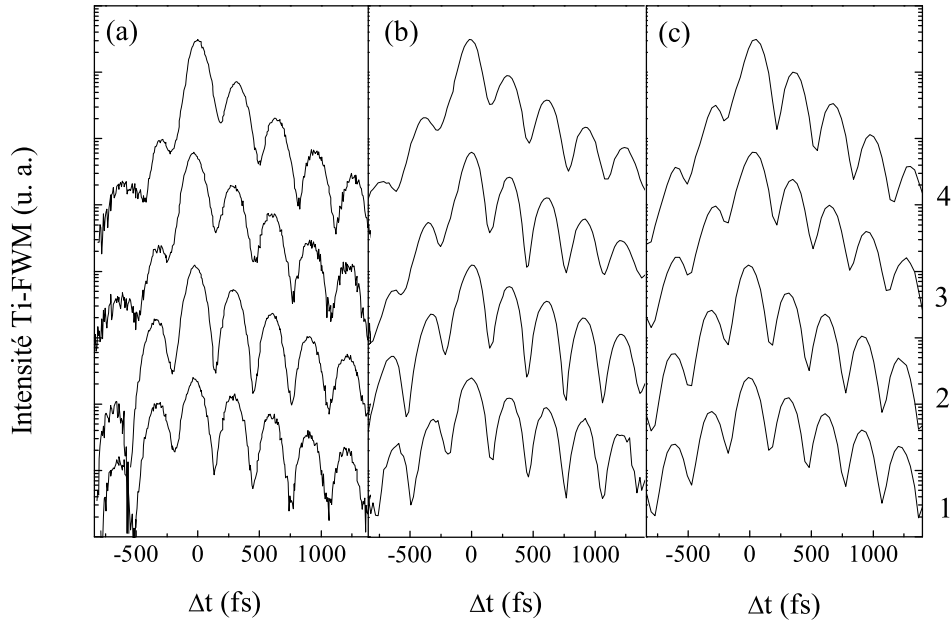


Fig. 4.10: Signal de Ti-FWM lorsque les deux polaritons sont excités, à désaccord nul. Résultats expérimentaux a) pour des impulsions de polarisations colinéaires, et b) pour des impulsions de polarisations cocirculaires ($\sigma^+\sigma^+$). c) : Ajustements. de 1 à 4 : $\kappa/(P_s^2V) = 0/0/3/4,5$. Valeur finale de γ_{px} : 1,45/2,3/3/3,75 meV.

série de signaux de Ti-FWM calculés correspondants. Nous parvenons à bien modéliser la variation particulière du contraste avec l'intensité d'excitation : à basse puissance, le contraste est le même à tout retard, les interactions coulombiennes sont dominantes ; à plus haute puissance, le contraste est plus faible aux retards négatifs et le blocage de Pauli devient de plus en plus important.

4.4.2 Détermination des non-linéarités

Le rapport du blocage de Pauli sur les interactions coulombiennes $\kappa/(P_s^2 V)$ est représenté figure 4.11 en fonction de la densité de porteurs absorbée par impulsion et par puits. Nous constatons de manière attendue qu'à basse densité de porteurs, les interactions coulombiennes sont prépondérantes. En effet, le remplissage de l'espace des phases n'est important *a priori* que lorsque la densité de porteurs est grande. Nous voyons en effet que, lorsque la densité de porteurs augmente, le blocage de Pauli est plus important relativement aux interactions coulombiennes, et si l'on suppose que sa valeur est constante, cela signifie que les interactions coulombiennes diminuent. Le plus surprenant est l'importance du blocage de Pauli à des densités de porteurs relativement faibles, à un ordre de grandeur en-dessous de la transition vers le régime de couplage faible, qui se situe à $n_w = 1,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (cf. § 3.3.7). Nous avons indiqué pour information la densité de saturation des excitons $n_{\text{sat}} = 4,8 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (cf. éq. 1.5). Nous trouvons que le seuil en-dessous duquel les interactions coulombiennes dominant est $n_c \approx 2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} = 0,04 n_{\text{sat}}$.

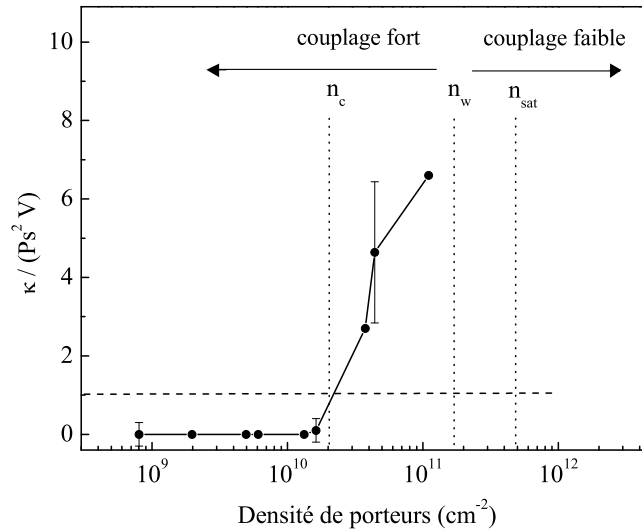


Fig. 4.11: Rapport du blocage de Pauli sur les interactions coulombiennes $\kappa/(P_s^2 V)$ en fonction de la densité de porteurs absorbée par impulsion pour un puits.

4.4.3 Conclusion

Dans les puits quantiques, Weiss *et al.* ont trouvé que les interactions coulombiennes moyennes prédominaient jusqu'à des densités de porteurs inférieures ou égales à n_{sat} [69], et que le blocage de Pauli n'apparaissait qu'à des densités de porteurs supérieures à la saturation excitonique. Nos résultats montrent que ces conclusions ne peuvent être facilement étendues aux microcavités, où l'effet du couplage fort modifie profondément la dynamique des excitons. Dans les conditions où nous excitons les deux modes de polaritons, le blocage de Pauli devient important à partir d'une densité seuil située à un ordre de grandeur en-dessous du seuil couplage fort / couplage faible.

Il faut noter que les deux modes de polaritons ne sont pas équivalents, même si le désaccord est nul [122]. Les dispersions du polariton de basse énergie et de haute énergie sont très différentes. Avant de continuer plus loin la discussion, il s'agit d'abord d'éclaircir le rôle de chaque polariton.

4.5 Excitation sélective d'un mode

Dans l'expérience décrite précédemment, nous avons excité également les deux modes de polaritons. Dans la mesure où la dispersion du polariton peut influencer la dynamique, nous étudions dans ce paragraphe les deux polaritons individuellement, par excitation sélective du mode de basse énergie ou de haute énergie. Nous montrons qu'ils ont effectivement une réponse cohérente différente. Nous exposons le principe de l'analyse, toujours fondée sur le contraste d'oscillations de Rabi, puis les différents résultats obtenus.

4.5.1 Comparaison des deux modes de polaritons

L'excitation sélective d'un mode de polariton est réalisée en ajustant la longueur d'onde centrale du laser en résonance avec le mode considéré. Néanmoins, on choisit volontairement une largeur spectrale d'impulsion laser qui permette d'exciter très légèrement l'autre mode de polariton (cf. fig. 4.12 b et 4.12 c). De cette façon, les battements quantiques peuvent, en principe, être encore observés et utilisés pour analyser la nature des non-linéarités qui gouvernent la dynamique.

La figure 4.12 montre une série d'expériences à désaccord nul et à une densité totale de porteurs par puits de $1.10^{10} \text{ cm}^{-2}$ pour l'ensemble des deux modes.

1. Nous excitons comme précédemment les deux polaritons de manière symétrique, comme on le voit dans la réflectivité fig. a. La courbe de Ti-FWM correspondante est représentée fig. d.
2. Nous déplaçons l'énergie centrale du laser de manière à exciter principalement le polariton de haute énergie (réflectivité fig. b). Comme le polariton

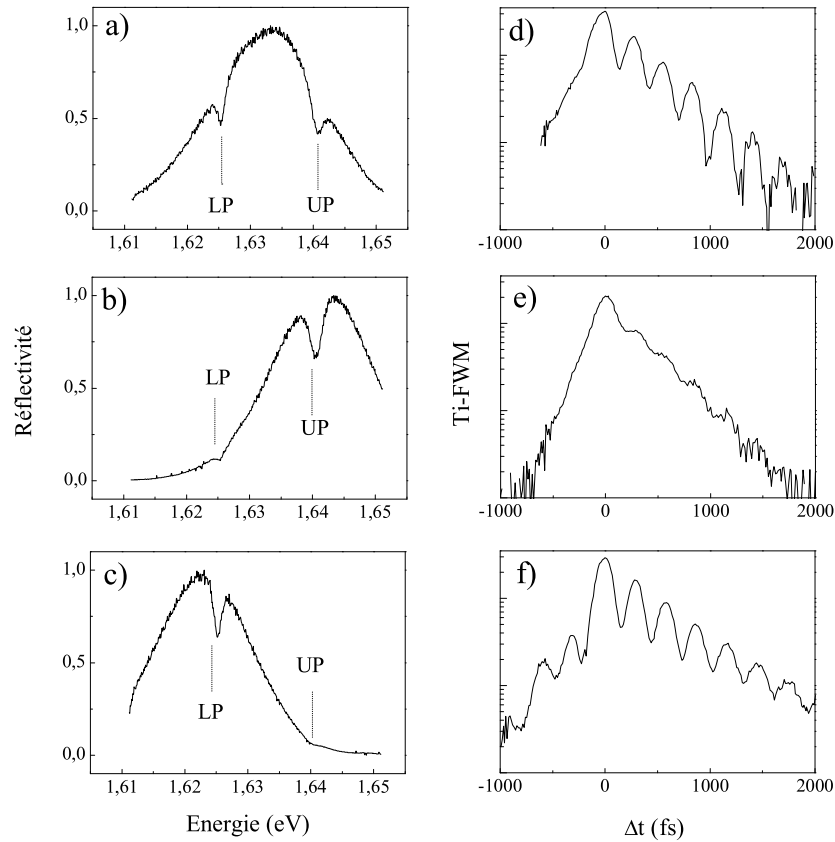


Fig. 4.12: Réflectivité (colonne de gauche) et signal de Ti-FWM (colonne de droite), lorsque l'on excite : 1. les deux modes de manière égale (UP (resp. LP) dénote le polariton de haute énergie (resp. le polariton de basse énergie)) (a et d), 2 : le polariton de haute énergie (b et e), 3. le polariton de basse énergie (c et f). Dans tous les cas, la densité de porteurs totale par puits est constante, égale à $1.10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Dans le cas 3, le rapport de l'absorption du mode de haute énergie sur celle du mode de basse énergie est l'inverse du cas 2.

de basse énergie est un peu excité, des oscillations apparaissent dans le signal de Ti-FWM (fig. e), mais très atténuées, et de contraste presque nul aux retards négatifs.

3. Nous déplaçons l'énergie centrale du laser sur le polariton de basse énergie, en prenant garde que le rapport de l'absorption du polariton de haute énergie et de celle du polariton de basse énergie soit l'inverse du cas précédent (réflectivité fig. c) (la densité de porteurs est précisément estimée selon la procédure décrite à l'annexe D). C'est donc la situation symétrique du cas 2. Pourtant, le signal de Ti-FWM (fig. f) est radicalement différent du cas 2, car il comporte des oscillations étonnamment contrastées, aux

retards positifs comme aux retards négatifs. Quant au temps de déclin, on constate qu'il est un peu plus grand (1 ps dans le cas 3 au lieu de 0,8 ps dans le cas 2).

On observe donc une différence frappante dans la réponse cohérente des deux polaritons. Puisque les spectres de réflectivité (fig. b et c) sont parfaitement symétriques, cela montre bien que les oscillations observées dans le signal de Ti-FWM n'ont rien d'un simple effet d'interférences (qui serait, lui, symétrique) mais sont gouvernées au contraire par les non-linéarités intrinsèques qui déterminent la dynamique.

Le faible contraste aux retards négatifs par rapport aux retards positifs dans le cas 2 tend à prouver que le blocage de Pauli prédomine pour le polariton de haute énergie, tandis que le fort contraste similaire aux retards positifs et négatifs implique une dynamique dominée par les interactions coulombiennes pour le polariton de basse énergie. Cela est très bien confirmé par le calcul (cf. fig. 4.13). Le signal expérimental de Ti-FWM pour le polariton de haute énergie (fig. a) est bien reproduit par le calcul (fig. b) dans lequel le remplissage de l'espace des phases domine ($\frac{\kappa}{P_s^2 V} \gg 1$), alors que le signal pour le polariton de basse énergie

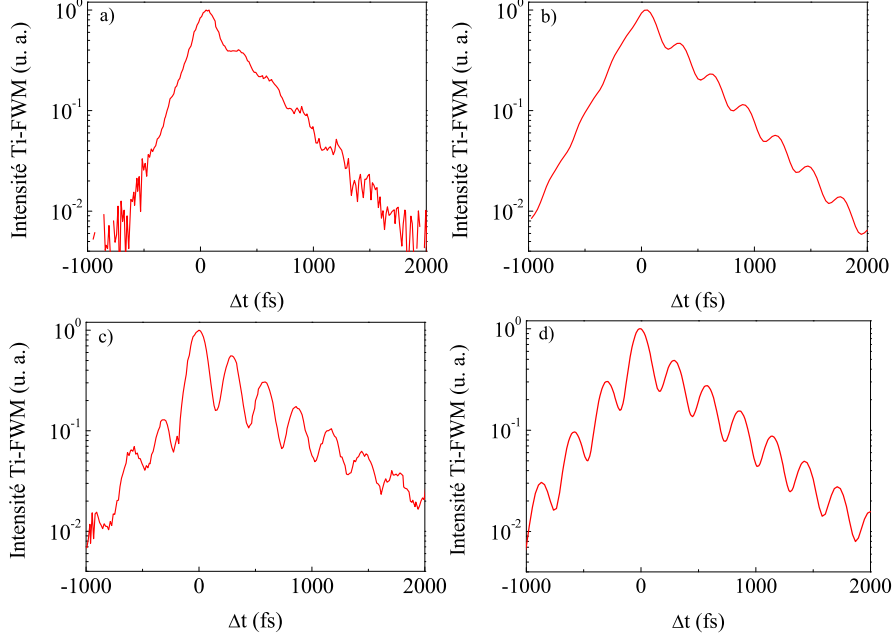


Fig. 4.13: Intensité du signal de Ti-FWM expérimentale (colonne de gauche) et théorique (colonne de droite) a) et b) lorsque le polariton de haute énergie est sélectivement excité, et c) et d) lorsque le polariton de basse énergie est sélectivement excité. La densité de porteurs totale par puits est $n = 1.10^{10} \text{ cm}^{-2}$.

(fig. c) est bien modélisé par le calcul (fig. d) à condition que les interactions coulombiennes dominent ($\frac{\kappa}{P_s^2 V} < 0,1$).

On notera de plus que notre calcul tient compte de la légère différence de temps de déclin dans les deux cas, déjà reportée dans [122], mais qu'à elle seule (c'est-à-dire avec le même poids relatif des non-linéarités) cette différence ne suffit pas à expliquer la différence de contraste observée.

La manifestation de cette différence de contraste pour chaque polariton dans des situations symétriques, est la signature d'une dynamique non-linéaire très différente des polaritons de haute et basse énergie.

4.5.2 Influence de la densité de porteurs

Nous excitons ici sélectivement chaque polariton de la même manière qu'au paragraphe précédent, en étudiant maintenant l'influence de la densité de porteurs. Le poids relatif du blocage de Pauli par rapport aux interactions coulombiennes est représentée sur la figure 4.14 pour un désaccord de +3 meV.

Sous un seuil correspondant à la densité de porteurs de $3.10^{10} \text{ cm}^{-2}$, les interactions coulombiennes dominent la dynamique du polariton de basse énergie. Ce seuil est très proche de celui reporté précédemment lors de l'excitation des deux modes (§ 4.4.2). En revanche, lorsque le polariton de haute énergie est sélectivement excité, le seuil disparaît et dans toute cette gamme de densité de porteurs, le blocage de Pauli domine la dynamique non-linéaire.

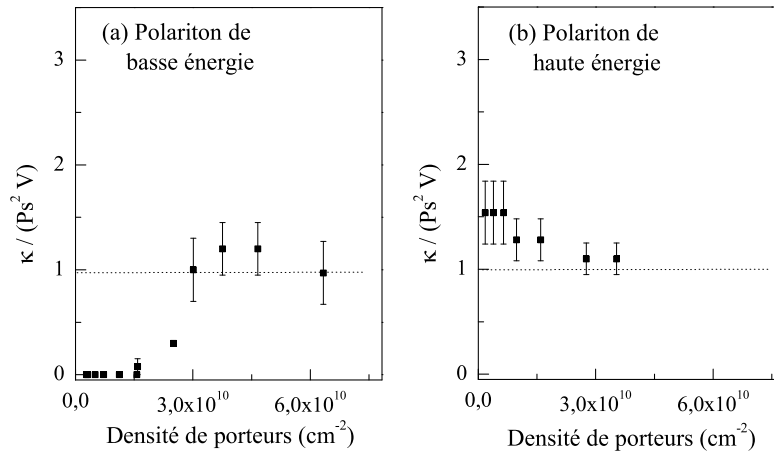


Fig. 4.14: Rapport du blocage de Pauli sur les interactions coulombiennes $\kappa/(P_s^2 V)$ en fonction de la densité de porteurs absorbée par impulsion pour un puits, a) pour le polariton de basse énergie, et b) pour le polariton de haute énergie. Le désaccord est de 3 meV.

4.5.3 Influence du désaccord

Afin d'étudier l'influence de la dispersion, dans une dernière série d'expériences, nous excitons sélectivement le polariton de basse énergie pour trois désaccords différents ($\delta = +3 \text{ meV}$, $\delta = -7 \text{ meV}$, $\delta = -16 \text{ meV}$). La figure 4.15 montre le poids relatif du blocage de Pauli par rapport aux interactions coulombiennes $\frac{\kappa}{P_s^2 V}$ en fonction de la densité de porteurs pour chacun de ces désaccords. Pour les désaccords négatifs, ce seuil semble apparaître pour des densités de porteurs d'autant plus grandes que le désaccord est négatif.

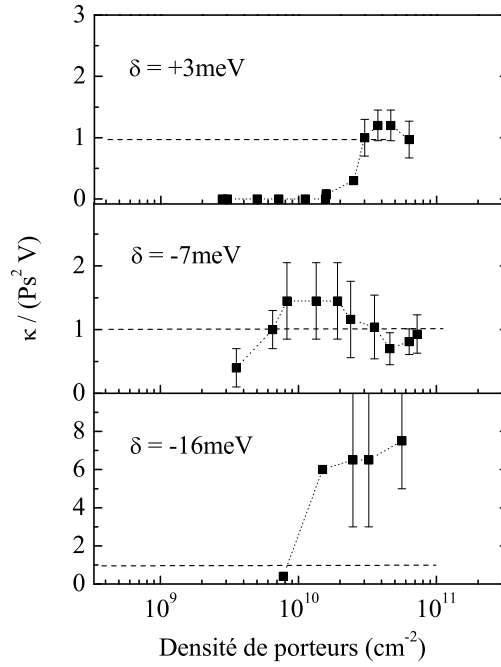


Fig. 4.15: Rapport du blocage de Pauli sur les interactions coulombiennes $\kappa/(P_s^2 V)$ en fonction de la densité de porteurs absorbée par impulsion pour un puits pour le polariton de basse énergie, pour un désaccord de a) 3 meV, b) -7 meV et c) -16 meV .

4.5.4 Discussion

Ces différentes expériences nous apprennent que le blocage de Pauli peut être prépondérant dans une microcavité en couplage fort. Pour le polariton de basse énergie, il est négligeable en dessous d'un seuil qui dépend du désaccord (et qui vaut $2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} = 0,04 n_{\text{sat}}$ à désaccord nul).

Au-delà de l'intérêt propre que présente la possibilité de déterminer expérimentalement la nature des non-linéarités gouvernant la dynamique cohérente des polaritons, nos résultats soulèvent plusieurs questions.

1. Quels sont les mécanismes intrinsèques à l'origine des résultats observés, en particulier pourquoi trouve-t-on un comportement différent pour les deux polaritons ? Par quels mécanismes le désaccord influence-t-il la valeur du seuil observé pour le polariton de basse énergie ?
2. Quelles conclusions peut-on en déduire quant à la validité des approximations bosoniques (présentées en introduction) utilisées par différents auteurs pour analyser la dynamique des polaritons de microcavité [123, 124, 125] ?

1. Il est important de noter que notre analyse permet d'accéder au poids relatif des sources de non-linéarités ($\frac{\kappa}{P_s^2 V}$) et non pas à leur contribution en valeur absolue. Comme nous l'avons dit précédemment, il est raisonnable de penser que le paramètre de saturation P_s qui détermine la saturation excitonique par remplissage de l'espace des phases, ne dépend pas de la densité de porteurs. La mesure du rapport $\frac{\kappa}{P_s^2 V}$ est une mesure indirecte de l'importance des interactions coulombiennes V . Ce terme, qui prend en compte les interactions coulombiennes moyennes (dans l'approximation de phase aléatoire), l'interaction d'échange et de l'écrantage peut être fortement affecté par la densité de porteurs et aussi par le vecteur d'onde.

On sait que le remplissage des états du réservoir excitonique à grand $\vec{k}_{//}$ favorise l'écrantage [126]. L'étude de la dynamique des polaritons par photoluminescence résolue en temps [127] nous apprend que le polariton de haute énergie est efficacement couplé au réservoir excitonique (temps caractéristique $\lesssim 1$ ps), même à faible densité de porteurs. Lorsque les polaritons de haute énergie sont excités dans notre expérience en $\vec{k}_{//} = 0$, on peut supposer qu'ils sont diffusés très vite vers le réservoir, ce qui induit un écrantage des interactions coulombiennes et diminue ainsi leur contribution.

Au contraire, l'existence d'un seuil en densité de porteurs pour le polariton de basse énergie est sans doute liée au fait que la dispersion de ce polariton forme une sorte de puits de potentiel autour de $\vec{k}_{//} = 0$. En effet, l'écrantage des interactions coulombiennes n'intervient que lorsque, à grande densité de porteurs, les polaritons excités en centre de zone peuvent par diffusion accéder au réservoir [51, 128]. Cette interprétation et la valeur du seuil à désaccord nul seront confirmées dans le chapitre 5, § 5.1.4 (on trouvera en effet un seuil d'élargissement collisionnel de $3,3 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ par puits pour un désaccord presque nul). Néanmoins, un calcul microscopique plus élaboré serait nécessaire pour rendre compte de la complexité des interactions à N corps dans ce problème.

2. Comme nous l'avons rappelé en introduction, un certain nombre de travaux

ont montré l'existence d'une émission non-linéaire très intense du polariton de basse énergie au-delà d'un certain seuil. Ces études ont été interprétées comme la manifestation d'effets bosoniques (stimulation par occupation de l'état final, condensation de Bose en $\vec{k}_{//} = 0\dots$) et décrites sur la base d'approximations bosoniques dans lesquelles les non-linéarités proviennent quasi exclusivement des interactions coulombiennes. Nous voulons comparer nos résultats à ces différentes études.

Dans une microcavité comparable à la nôtre, à désaccord nul, Dang *et al.* [26] mettent en évidence une non-linéarité dans la photoluminescence émise par le polariton de basse énergie, de pair avec un affinement de la raie; cet effet est interprété en terme de stimulation de polaritons et apparaît à un seuil de densité de porteurs par puits quantique estimé à $2,9 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, seuil très proche du nôtre.

Dans des microcavités III-V, Senellart *et al.* [108] mesurent également un seuil de stimulation dans la photoluminescence à $2 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$. Sachant que n_{sat} est estimé à $4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, le seuil vaut alors $0,05 n_{\text{sat}}$, ce qui est aussi proche de notre seuil.

Un calcul de l'intensité de la photoluminescence lorsque l'excitation est résonnante avec le polariton de basse énergie a été effectué par Ciuti *et al.* [125]. Une non-linéarité dans l'intensité de la photoluminescence avec la puissance d'excitation est induite par stimulation par l'occupation des états en $k = 0$, et la valeur calculée du seuil à partir duquel apparaît ce phénomène est aussi de $0,05 n_{\text{sat}}$ pour des matériaux III-V.

La comparaison avec d'autres travaux est difficile car les densités de porteurs sont rarement données, mais dans l'ensemble, les effets de stimulation apparaissent à des puissances d'un ordre de grandeur en-dessous de la transition vers le couplage faible, typiquement là où nous trouvons que le blocage de Pauli ne peut plus être négligé, voire domine la dynamique.

Contrairement à ce qui est souvent affirmé, la persistance du couplage fort n'est pas un critère suffisant pour négliger le blocage de Pauli. Nous montrons que même lorsque le comportement des polaritons est bosonique, le blocage de Pauli peut être important et dominer la réponse non-linéaire, et que les interactions coulombiennes ne sont pas les seules sources de non-linéarités.

Remarquons pour terminer que le terme non-linéaire décrivant les interactions coulombiennes ($VP|P|^2$) utilisé dans les approximations bosoniques possède, comme nous l'avons démontré dans ce chapitre, la même enveloppe temporelle que le terme non-linéaire décrivant le blocage de Pauli ($\kappa E|P|^2/|P_s^2|$). Une simple expérience d'émission n'est pas *a priori* à même de discriminer ces deux contributions non-linéaires.

4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les expériences de mélange à quatre ondes intégré en temps qui nous ont permis de mesurer les non-linéarités responsables de la dynamique observée dans notre microcavité. Elles consistent à exciter les deux modes afin d'obtenir des oscillations de Rabi. En effet, nous avons montré que le contraste de ces oscillations était gouverné par le poids relatif des non-linéarités dues aux interactions coulombiennes et au remplissage de l'espace des phases.

Pour ce faire, nous avons fondé notre analyse sur la résolution des équations de Maxwell-Bloch, développées jusqu'à l'ordre 3, afin de calculer la polarisation à l'ordre 3. Le signal de mélange à quatre ondes intégré en temps, mesuré en fonction du retard entre les deux impulsions du laser, est proportionnel au carré du module de cette quantité intégré dans le temps. Il a été calculé pour chaque non-linéarité : les interactions coulombiennes conduisent à un signal bien contrasté, tandis que le signal dû au blocage de Pauli présente des oscillations moins contrastées aux retards négatifs qu'aux retards positifs. Ces caractéristiques proviennent du déphasage existant entre le champ intracavité et la polarisation. Le terme non-linéaire dû au blocage de Pauli combine le champ et la polarisation, alors que pour les interactions coulombiennes seule la polarisation intervient.

En tirant parti de cette différence de comportement entre ces deux non-linéarités, nous avons modélisé nos courbes expérimentales et montré qu'il existait une plage de densité de porteurs en couplage fort où le blocage de Pauli était important. Nous avons aussi étudié les non-linéarités qui gouvernaient la dynamique de chaque polariton en excitant sélectivement un mode. Nous montrons que les deux polaritons obéissent à des dynamiques très différentes : le blocage de Pauli est toujours important pour le polariton de haute énergie, tandis qu'il ne l'est qu'à partir d'un certain seuil pour le polariton de basse énergie. La dispersion, très différente pour chaque polariton, est sans doute indirectement à l'origine d'un écrantage des interactions coulombiennes plus efficace pour le polariton de haute énergie que pour l'autre polariton. Nous allons, dans le prochain chapitre, étudier plus en détail l'influence de la dispersion.

Chapitre 5

Étude angulaire

La modification de la dispersion des polaritons par rapport à celle de l'exciton est à l'origine d'une dynamique très différente. Par exemple, elle affecte profondément l'efficacité des mécanismes de diffusion [128] ou de relaxation [123, 129, 21, 35, 130].

En particulier, ainsi que l'ont montré Ciuti *et. al* [51] et Baars *et. al* [128] dans des microcavités III-V, la diffusion polariton-polariton sur la branche basse énergie due aux interactions coulombiennes dépend fortement de la dispersion du polariton : la diffusion des polaritons excités en centre de zone est fortement inhibée lorsque ces derniers restent confinés dans la région de faible densité d'état autour de $\vec{k}_{//} = 0$. Seule une forte excitation leur permet d'être diffusés vers le réservoir excitonique aux grands vecteurs d'onde. En conséquence, la largeur homogène du mode polariton présente un effet de seuil séparant ces deux régimes (élargissement collisionnel).

Un autre aspect intéressant de la modification de la dynamique dans les microcavités est la possibilité d'obtenir un régime de stimulation se traduisant par une émission fortement non-linéaire : sous excitation non résonante, Dang *et al.* [26] ont mis en évidence l'existence d'un seuil de puissance d'excitation au-delà duquel l'émission augmente brutalement. Une avancée majeure dans la compréhension de ce mécanisme a été obtenue par les expériences de Savvidis *et al.* [27]. Ces auteurs ont montré qu'il était possible de peupler efficacement les états en $\vec{k}_{//} = 0$ en injectant des polaritons à un angle voisin du point d'inflexion de la courbe de dispersion ; en effet, deux polaritons simultanément photocréés à cet angle particulier, peuvent diffuser très efficacement vers un polariton en $\vec{k}_{//} = 0$ (appelé « signal ») et un autre à plus grand $\vec{k}_{//}$ (appelé « complémentaire » ou encore « idler » en anglais). Les conditions de diffusion sont possibles à satisfaire grâce à la forme particulière de la courbe de dispersion car la conservation de l'énergie et de l'impulsion est alors aisément réalisée. Le processus est ainsi schématisé par $2(\vec{k}_p, \omega_p) \rightarrow (\vec{k}_s, \omega_s) + (\vec{k}_c, \omega_c)$ avec $2\vec{k}_p = \vec{k}_s + \vec{k}_c$ et $2\omega_p = \omega_s + \omega_c$. L'angle en question est connu depuis sous le nom d'« angle » magique. Lorsque les états en $\vec{k}_{//} = 0$ sont suffisamment peuplés et atteignent un nombre d'oc-

cupation proche de l'unité, la diffusion polariton-polariton est stimulée par occupation de l'état final en $\vec{k}_{//} = 0$. Ce processus s'accompagne en particulier d'un affinement de la raie d'émission, qui présage d'une forte augmentation de la cohérence des polaritons dans cet état. Cette dynamique révèle de fortes analogies avec l'oscillation paramétrique [124, 125, 131], déjà bien connue dans le domaine de l'optique non-linéaire, dans lequel un photon de pulsation ω_3 est converti en un photon « signal » de pulsation ω_1 et un photon « complémentaire » de pulsation ω_2 , tels que $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Depuis lors, de nombreuses études se sont multipliées pour étudier l'émission du « signal » ou du « complémentaire » [30, 31, 32, 33, 34, 29, 28, 35, 36].

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à ces différents mécanismes de diffusion polariton-polariton [132, 133, 134, 135, 136, 137]. Dans un premier temps, nous étendons l'étude de l'élargissement collisionnel sous incidence normale au cas d'une excitation en incidence quelconque, par une expérience de mélange à quatre ondes résolue en angle. Nous mettons en évidence l'existence d'un seuil dépendant de l'angle d'incidence, qui est la contrepartie du seuil dépendant de la densité d'excitation mentionnée plus haut, et qui s'explique bien dans le même formalisme. Dans un deuxième temps, nous étudions plus spécifiquement le problème de l'oscillation paramétrique en excitant le système à l'angle magique. En particulier, nous nous concentrons sur la dynamique cohérente des polaritons photocréés par le faisceau de pompe.

5.1 Mesures en incidence normale

Ce chapitre présente les résultats des expériences de mélange à quatre ondes en configuration cocirculaire et en incidence normale, qui nous ont permis de mesurer les temps de cohérence du polariton de basse énergie, en fonction de la puissance d'excitation. Afin d'analyser nos résultats, nous avons utilisé un modèle qui permet de calculer l'élargissement de la raie de ce polariton. Nous exposons ce modèle et ses prédictions, que nous confrontons à nos mesures.

5.1.1 Résultats expérimentaux

Nous excitons uniquement le polariton de basse énergie en incidence normale. La figure 5.1 montre quelques exemples de courbes de mélange à quatre ondes intégré en temps pour différentes puissances d'excitation. Le signal ne présente plus d'oscillations de Rabi, comme dans le chapitre précédent, puisqu'un seul des deux polaritons est excité. Mis à part les battements, nous retrouvons la même allure du signal que dans le chapitre précédent (cf. § 4.1.2) : l'intensité croît exponentiellement, et décroît exponentiellement avec un temps de déclin environ deux fois plus grand, comme attendu dans le cas de systèmes homogènes [46]. Le temps de déclin correspond donc à la moitié du temps de cohérence $T_2/2$.

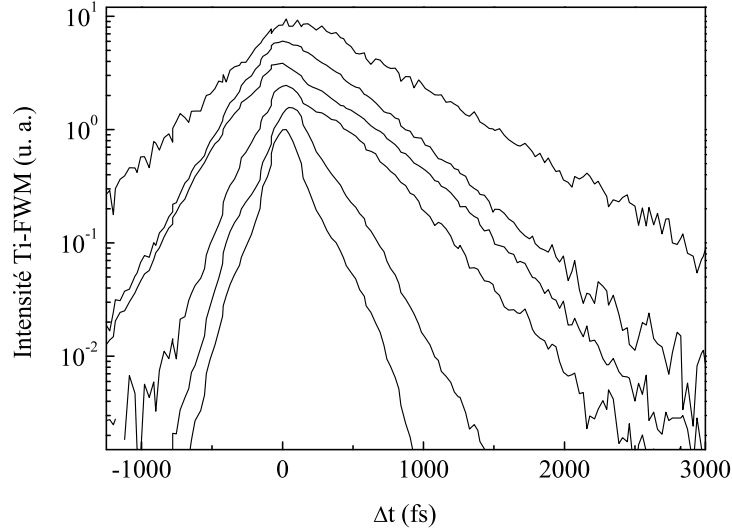


Fig. 5.1: Échantillon M1159. Signal de mélange à quatre ondes intégré en temps mesuré en incidence quasi normale pour le polariton de basse énergie, à un désaccord de $+1$ meV, aux densités d'excitation croissantes suivantes (de haut en bas) : $4,8/8,3/21,1/55,3/103,3/157,2$ $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$).

L'ajustement exponentiel de la décroissance du signal permet d'en déduire les temps de cohérence T_2 , qui sont reportés sur la figure 5.2. Pour un désaccord de $+1$ meV, le temps T_2 décroît avec la puissance d'excitation de 1250 à 250 fs ; pour un désaccord de -7 meV, T_2 reste pratiquement constant, égal à environ 1800 fs. Cette valeur est beaucoup plus élevée que dans le cas du désaccord de 1 meV. Elle correspond à une largeur du polariton de $2\hbar/T_2 = 0,75$ meV, qui est proche de la largeur de la cavité. En effet, le polariton de basse énergie au désaccord de -7 meV est $2/3$ cavité et on constate que sa largeur reste limitée par celle de la cavité.

Enfin, la figure 5.3 montre les mesures de T_2 pour nos deux échantillons à désaccord quasi nul. T_2 diminue doucement puis plus rapidement à partir d'une certaine puissance d'excitation (3 W/cm^2 pour la microcavité M1121, de dédoublement de Rabi 7 meV, et 10 W/cm^2 pour la microcavité M1159, de dédoublement de Rabi 13,6 meV).

En résumé, le temps de cohérence du polariton de basse énergie a une dépendance en fonction de la puissance d'excitation qui présente un *effet de seuil*. Le temps de cohérence T_2 est presque constant à basse puissance puis décroît plus fortement au delà de ce seuil. Ce seuil n'apparaît pas pour un désaccord négatif. D'autre part, il est plus faible (pour un même désaccord) lorsque le dédoublement de Rabi est plus faible (en toute rigueur, il faudrait comparer le seuil en densité de porteurs injectée ; dans ce cas, nous verrons que ce résultat reste vrai).

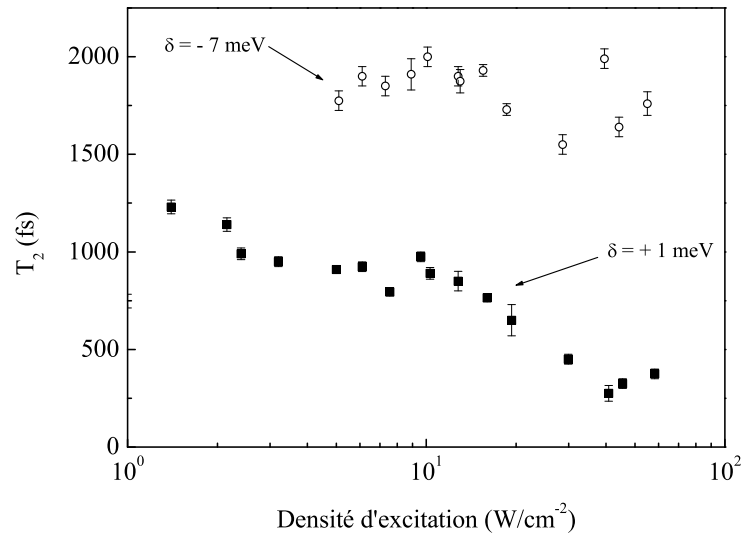


Fig. 5.2: Temps de cohérence T_2 en fonction de la densité d'excitation, mesuré en incidence normale à un désaccord de 1 meV (symboles fermés) et -7 meV (symboles ouverts) sur la microcavité M1159.

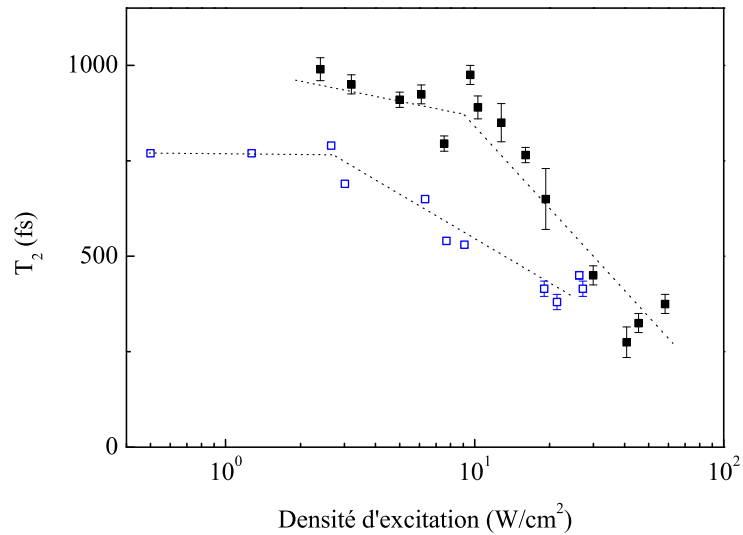


Fig. 5.3: Temps de cohérence T_2 en fonction de la densité d'excitation, mesuré en incidence quasi normale à un désaccord quasi nul pour la microcavité M1159 (symboles fermés) et la microcavité M1121 (symboles ouverts). Les pointillés sont un guide pour l'œil.

5.1.2 Calcul de l'élargissement collisionnel

Nous allons interpréter les résultats exposés au paragraphe précédent. Le temps de cohérence mesuré T_2 est relié à la largeur homogène du polariton par la relation $\Gamma = 2\hbar/T_2$. Nous calculons l'élargissement de la raie du polariton de basse énergie dû à la diffusion polariton-polariton en adaptant aux matériaux II-VI un modèle développé par Ciuti *et. al.* [51]. Ce modèle nous permet d'interpréter les résultats en terme d'échappement des polaritons excités en $\vec{k}_{//} = 0$ vers le réservoir excitonique à grand $\vec{k}_{//}$.

5.1.3 Le modèle

Ciuti *et. al.* ont modélisé théoriquement l'élargissement collisionnel de l'exciton d'un puits quantique sous excitation résonante [76]; cet élargissement de la raie excitonique, dû à des collisions entre excitons est homogène et dépend de la densité de porteurs injectés. Leurs calculs montrent que les mécanismes dominants de l'interaction sont l'interaction coulombienne d'échange d'excitons; l'interaction coulombienne directe, et l'échange électron-électron ou trou-trou sont beaucoup plus faibles.

Cette théorie est étendue au cas des polaritons de microcavité dans la référence [51]. En effet, les polaritons étant des combinaisons linéaires de l'exciton et du photon, ils interagissent grâce à leur fraction excitonique (donnée par le carré du module du coefficient de Hopfield X). Dans le cas des microcavités, le calcul est fait lorsque l'excitation est polarisée circulairement (comme dans nos expériences); il ne tient pas compte des interactions éventuelles avec le polariton de haute énergie et avec les états noirs. D'autre part, il est effectué pour un système parfaitement bidimensionnel. Dans ce cadre, Ciuti *et. al.* ont alors calculé l'élargissement collisionnel du polariton de basse énergie dû aux interactions coulombiennes, lorsque ce polariton est excité en résonance en $\vec{k}_{//} = 0$. Il est donné par :

$$\Gamma - \Gamma_0 = \frac{4\hbar^4}{\pi^4 \mu^2} n \int_0^\infty dq q F_q |X_q|^4 |X_0|^4 \mathcal{L}(2E_q - 2E_0, 4\Gamma) \quad (5.1)$$

où

$$\mathcal{L}(E, \gamma) = \frac{1}{\pi} \frac{\gamma/2}{E^2 + (\gamma/2)^2} \quad (5.2)$$

Le processus collisionnel décrit ici est la diffusion de deux polaritons de vecteur d'onde $\vec{k}_{//} = 0$ vers deux polaritons de vecteurs d'onde $-\vec{q}$ et \vec{q} . Explicitons les différents termes qui interviennent.

- La fonction lorentzienne \mathcal{L} représente la conservation de l'énergie, à la largeur du polariton près. Dans le cas d'une conservation stricte de l'énergie, cette fonction tend vers la fonction delta, et nous retrouvons la règle d'or de Fermi.
- La diffusion fait intervenir quatre contributions : l'interaction coulombienne directe et l'interaction coulombienne d'échange d'exciton, d'échange électron-

électron et d'échange trou-trou. La fonction F_q est égale à la somme des carrés des éléments de matrice qui décrivent, par ces quatre mécanismes, la diffusion de deux excitons. Elle est calculée numériquement et tracée en fonction du vecteur d'onde normalisé par le rayon de Bohr, $qa_{\text{B}}^{2\text{D}}$, pour les matériaux III-V dans la référence [76] (fonction F_{xx}). La nature des matériaux intervient à travers le rapport des masses effectives de l'électron et du trou, et via le vecteur d'onde normalisé. Or la fonction F_q est très peu sensible au rapport des masses. Pour l'adapter à nos matériaux II-VI, il nous a donc suffi de reprendre les valeurs numériques de $F(qa_{\text{B}}^{2\text{D}})$ en changeant la valeur du vecteur d'onde normalisé.

- Puisque les polaritons interagissent via leur partie excitonique, le terme F_q est modulé par le carré des modules des coefficients de Hopfield, qui rend compte de la fraction excitonique des polaritons. $|X_0|^4$ donne les fractions excitoniques pour les deux polaritons de pompe, et $|X_q|^4 = |X_q|^2 |X_{-q}|^2$, celles pour les polaritons dans les états finals.
- n est la densité de polaritons, μ la masse réduite de l'exciton, égale à $0,084 m_0$ (cf. 3.1.3). Enfin, Γ_0 est la largeur homogène du polariton à excitation nulle.

Nous résolvons cette équation par itération. Les paramètres sont au nombre de quatre. Nous avons besoin de la valeur des coefficients de Hopfield (cf. éq. 1.16), donc les paramètres nécessaires sont ceux qui permettent de calculer la dispersion des polaritons : le dédoublement de Rabi, l'indice effectif de la cavité n_{cav} , et le désaccord exciton-photon δ . Le dernier paramètre est la largeur homogène du polariton dans la limite d'une densité d'excitation nulle Γ_0 .

Ciuti *et. al.* [51] avaient prévu l'existence d'un seuil en fonction de la densité de porteurs au-delà duquel l'élargissement collisionnel est beaucoup plus important. L'existence de ce seuil s'explique grâce à la forme particulière de la dispersion du polariton (voir fig. 5.4). A faible densité de porteurs, seule la région de faible vecteur d'onde $\vec{k}_{//}$ est accessible pour les états finals, car la conservation de l'énergie ne permet pas à deux polaritons en $\vec{k}_{//} = 0$ d'accéder au réservoir excitonique. En effet, la largeur du polariton est très petite devant la différence d'énergie entre l'énergie du réservoir et celle de centre de zone $\Delta E = E_{\text{exc}}(k_{//} = 0) - E_{-}(k_{//} = 0)$ (cf. fig. 5.4). Or dans cette région, la densité d'état est faible. Il y a peu d'états finals accessibles pour la diffusion, et l'élargissement collisionnel $\Gamma - \Gamma_0$ reste très faible. En revanche, à forte densité de porteurs, lorsque la largeur du polariton devient comparable à ΔE , la conservation de l'énergie est beaucoup moins stricte et les états du réservoir correspondant aux grands $k_{//}$ deviennent accessibles. Cette région, où la dispersion est presque celle de l'exciton, possède une grande densité d'état. Dans ce cas, les états du réservoir sont accessibles par diffusion et l'élargissement collisionnel est important. Le rapport de la masse du polariton en $\vec{k}_{//} = 0$ à celle de l'exciton étant très faible ($0,8 \cdot 10^{-4}$), la fuite des porteurs hors du piège que forme la dispersion autour de $\vec{k}_{//} = 0$ est relativement brusque et se

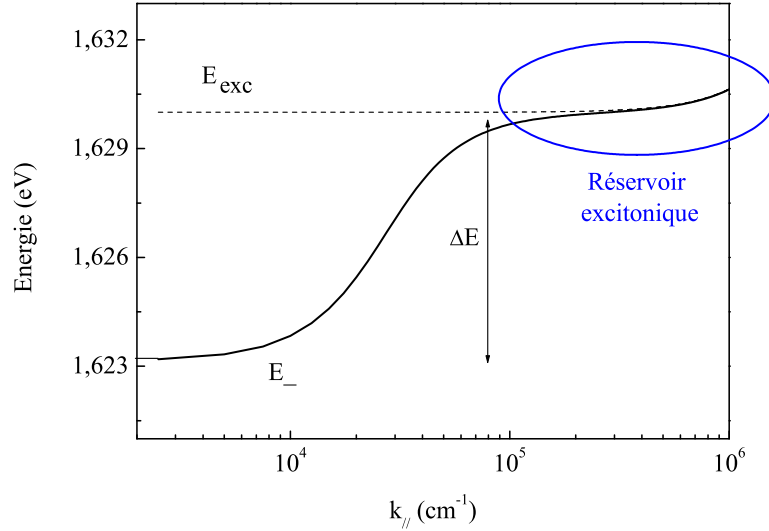


Fig. 5.4: Dispersion du polariton de basse énergie (E_-). ΔE correspond à la différence d'énergie entre le réservoir excitonique et l'énergie du polariton en $k_{//} = 0$, $E_-(k_{//} = 0)$.

traduit par un seuil en densité de porteurs.

L'existence de ce seuil et sa valeur dépendent du désaccord, puisque la dispersion est d'autant plus creusée en centre de zone que le désaccord est petit (voir fig. 1.13). Pour sortir du piège de centre de zone, une densité de porteurs de plus en plus grande est nécessaire. Le seuil est alors de plus en plus grand au fur et à mesure que l'on se déplace vers les désaccords négatifs.

Ce propos est illustré dans la figure 5.5 dans laquelle nous présentons le calcul de l'élargissement collisionnel $\Gamma - \Gamma_0$ pour une largeur homogène du polariton Γ_0 égale à 0,1 meV et pour trois désaccords différents (excepté pour la courbe en pointillés où $\Gamma_0 = 0,9$ meV). Nous avons aussi calculé et reporté sur la figure l'élargissement collisionnel pour un exciton nu, obtenu par la relation 5.1 où les fractions excitoniques sont égales à l'unité [76] : celui-ci ne présente évidemment pas de seuil. On observe effectivement l'existence d'un seuil dont la valeur décroît pour des désaccords plus grands. Au delà du seuil, lorsque les polaritons peuvent accéder au réservoir excitonique, l'élargissement collisionnel est proche de celui calculé pour l'exciton. On notera de plus que pour un désaccord donné ($\delta = +7$ meV en l'occurrence sur la figure), le seuil est moins marqué lorsque Γ_0 est plus grand. En effet, la règle de conservation de l'énergie est moins stricte (la lorentzienne est plus large) dès les basses densités.

Ce comportement en seuil a été vu expérimentalement par Baars *et al.* sur une microcavité III-V [128] ; l'accord avec le calcul de Ciuti est seulement qualitatif, c'est-à-dire que le calcul reproduit bien la variation de l'élargissement collisionnel

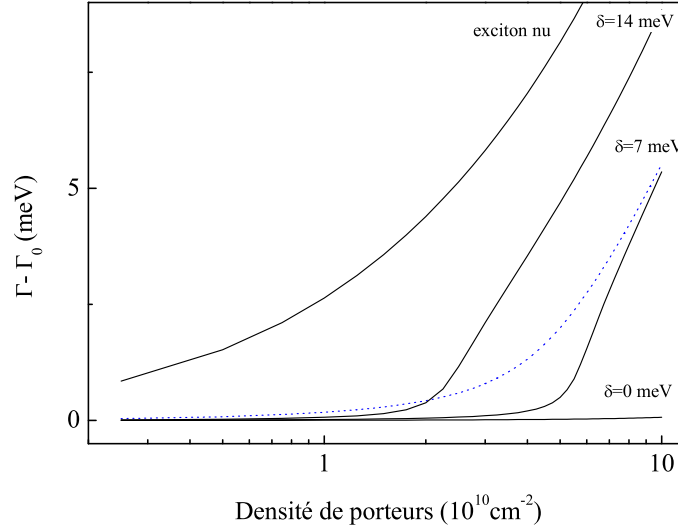


Fig. 5.5: Calcul de l'élargissement collisionnel $\Gamma - \Gamma_0$ du polariton pour différents désaccords et pour l'exciton, en fonction de la densité de porteurs, en incidence normale. Le calcul est effectué avec $\Gamma_0 = 0,1 \text{ meV}$ (traits continus) pour les trois désaccords et $\Gamma_0 = 0,9 \text{ meV}$ (pointillés) pour $\delta = 7 \text{ meV}$. (calculs effectués avec les paramètres de l'échantillon M1159).

avec la densité de porteurs, mais que les valeurs calculées sont plus grandes que les valeurs expérimentales ; Baars *et al.* supposent que les différentes approximations (système parfaitement bidimensionnel, diffusions multiples négligées...) peuvent influencer sur la valeur absolue de l'élargissement.

Le modèle discuté ci-dessus fait l'hypothèse que seules les interactions coulombiennes entre deux polaritons sont à l'origine de la diffusion des polaritons. Or nous avons montré dans le chapitre 4 qu'à partir d'une certaine densité de porteurs, les interactions coulombiennes ne suffisaient pas à expliquer toute la dynamique, et qu'il fallait tenir compte du blocage de Pauli. Néanmoins, par souci de simplicité, et de clarté de l'analyse, nous nous limiterons à cette approximation. Cette dernière est valable pour de basses densités de porteurs en ce qui concerne le polariton de basse énergie.

5.1.4 Élargissement collisionnel à l'angle nul

Nous appliquons ce modèle au calcul de l'élargissement de la raie du polariton lorsque l'excitation est résonante avec le polariton en $\vec{k}_{//} = 0$. Nous déduisons d'abord des résultats expérimentaux exposés au § 5.1.1, l'élargissement de la raie du polariton en fonction de la puissance incidente. La figure 5.6 montre ces résultats expérimentaux et notre calcul, pour la microcavité M1159. Les paramètres

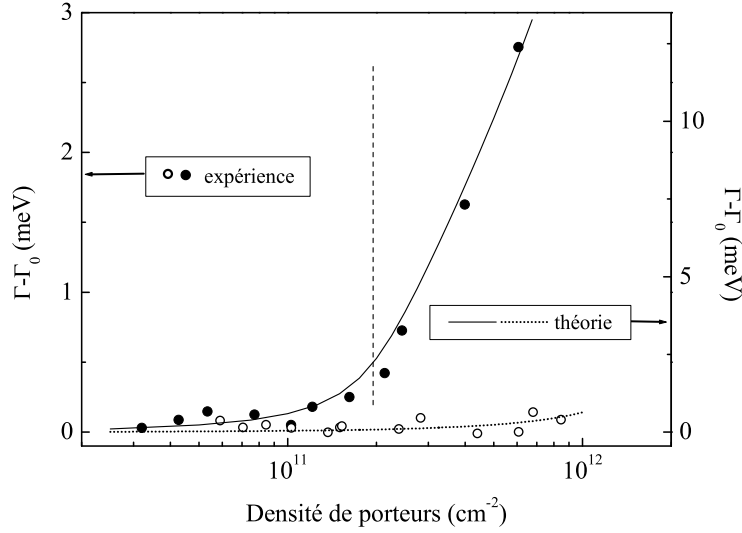


Fig. 5.6: Élargissement collisionnel $\Gamma - \Gamma_0$ en fonction de la densité de porteurs, en incidence normale, pour deux désaccords δ (microcavité M1159). Échelle de gauche : résultats expérimentaux. \bullet : $\delta = 1$ meV et \circ : $\delta = -7$ meV. Échelle de droite : calcul. trait continu : $\delta = 0$ meV et pointillés : $\delta = -7$ meV. Les pointillés verticaux indiquent le seuil en densité de porteurs pour $\delta = 1$ meV.

utilisés pour ce calcul correspondent relativement bien aux données expérimentales : le dédoublement de Rabi est de 14 meV, $\Gamma_0 = 0,9$ meV, l'indice effectif de la cavité est $n_{\text{cav}} = 2,5$, et les désaccords entrant dans le calcul sont -7 meV et 0 meV.

Nous trouvons un très bon accord avec l'expérience. Nous reproduisons d'une part un élargissement très faible pour le désaccord négatif, et d'autre part l'existence d'un seuil pour le désaccord de 3 meV. Pour un désaccord négatif tel que -7 meV, le puits de potentiel que forme la dispersion autour de $\vec{k}_{//} = 0$ est très profond, et même à grande densité de porteurs (avant la transition vers le couplage faible), les porteurs ne peuvent pas s'échapper. Pour un désaccord légèrement positif, ce puits de potentiel est moins profond et il existe une densité de porteurs à partir de laquelle les polaritons peuvent sortir du puits et accéder aux états du réservoir. Le seuil est bien reproduit et vaut environ $2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$. Nous obtenons un désaccord quant aux valeurs absolues de l'élargissement, comparable au cas des microcavités III-V [128] où le calcul donne une surestimation d'un facteur 3 ; dans notre cas, il est d'un facteur inférieur à 4 (on notera les échelles différentes pour les valeurs expérimentales (à gauche) et celui pour le calcul (à droite) sur la fig. 5.6).

Dans le cas de la microcavité M1121, à désaccord nul, le calcul reproduit très bien les élargissements déduits de la mesure du temps de cohérence (cf. fig. 5.7).

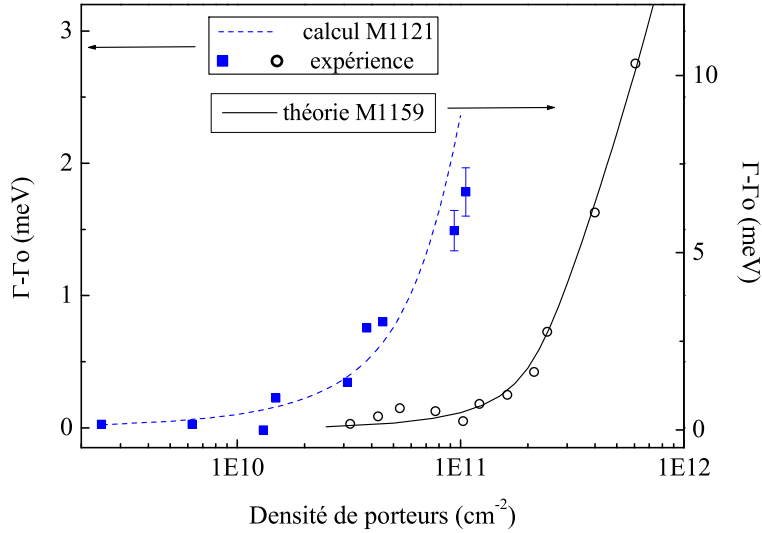


Fig. 5.7: Élargissement collisionnel en fonction de la densité de porteurs, à un désaccord nul. Échelle de gauche : résultats expérimentaux (symboles fermés : microcavité M1121, symboles ouverts : microcavité M1159) et calcul pour la microcavité M1121 (en pointillés). Échelle de droite : calcul pour la microcavité M1159 (trait continu).

Ces deux microcavités diffèrent par leur dédoublement de Rabi. Celui-ci est seulement de 7 meV pour la microcavité M1121, et le creux de dispersion en centre de zone est alors moins profond. Aussi le seuil au-delà duquel l'élargissement est important est plus petit que dans le cas de la microcavité M1159. Il est de l'ordre de $4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, alors que pour la microcavité M1159, comme on vient de le voir, le seuil est environ $2 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2}$ (voir la comparaison sur la figure 5.7).

5.1.5 Conclusion

L'élargissement collisionnel des polaritons est fortement modifié par rapport au cas de l'exciton nu, comme nous venons de le voir. Un comportement en seuil avec la densité de porteurs était prévu théoriquement et mesuré dans les cavités III-V. Nous reportons les mêmes conclusions dans les cavités II-VI.

Nous avons vu que lorsqu'on excite des polaritons en $\vec{k}_{//} = 0$, l'élargissement de la raie du polariton devient important quand les états du réservoir sont accessibles ; en effet, la fonction lorentzienne \mathcal{L} , qui tient lieu de conservation de l'énergie, possède alors une largeur qui est de l'ordre de la différence d'énergie entre les états de faible $\vec{k}_{//}$ et le réservoir excitonique, ΔE . Pour cela, il est nécessaire d'exciter le système avec une densité d'excitation suffisante. Dans ce problème, la dispersion joue un rôle crucial, qui sera étudié de façon plus approfondie par des mesures pour différents angles d'incidence dans les paragraphes suivants.

En effet, une alternative pour atteindre les états du réservoir est de faire varier le vecteur d'onde de l'excitation k_p . Lorsque la densité d'excitation est constante, la largeur de la lorentzienne est fixée ; il doit exister un angle au-delà duquel les polaritons peuvent être diffusés dans les états du réservoir. On s'attend alors à retrouver également un comportement de seuil avec l'angle d'excitation.

Pour un vecteur d'onde d'excitation k_p donné, on s'attend à trouver un comportement du même type qu'à angle nul lorsque la densité d'excitation augmente, à savoir un seuil en densité de porteurs pour l'élargissement collisionnel. Puisque l'on s'approche des états du réservoir lorsque l'angle d'excitation augmente, le seuil devrait diminuer lorsque l'angle d'excitation croît.

Ces deux possibilités sont envisagées dans les paragraphes suivants.

5.2 Élargissement collisionnel : dépendance angulaire

5.2.1 Principe de l'expérience

Nous avons effectué des mesures de mélange à quatre ondes en configuration cocirculaire, pour plusieurs angles d'incidence. Pour pouvoir comparer les mesures d'un angle à l'autre, il est nécessaire *a priori* de se référer à la densité de porteurs créés et non à la puissance incidente (sauf pour des angles d'incidence proches). En effet, lorsque l'angle d'incidence augmente, l'absorption du polariton de basse énergie change : le poids exciton augmente avec le vecteur d'onde et comme c'est la composante cavité qui couple le polariton à l'extérieur, l'absorption diminue. Le calcul par matrices de transfert montre que l'aire intégrée du pic d'absorption du polariton de basse énergie diminue d'un facteur 3 quand l'angle d'incidence passe de 0° à 25° . Nous avons donc mesuré à chaque puissance incidente la réflectivité dans les conditions de l'expérience de mélange à quatre ondes, afin de mesurer la densité de porteurs dans chaque cas (cf. annexe D).

Le signal de Ti-FWM a été mesuré à densité de porteurs constante, en fonction de l'angle d'excitation, selon la procédure décrite au chapitre 3, qui nous permet de sonder sélectivement un polariton d'énergie et de vecteur d'onde $(E, \vec{k}_{//})$ donné.

À chaque angle d'incidence, nous avons effectué une mesure de la réflectivité large bande afin de connaître l'énergie des deux modes de polariton. Nous en déduisons à la fois le désaccord et le vecteur d'onde. Nous nous sommes d'abord placés à un désaccord faible, $\delta = +3 \text{ meV}$. La figure 5.8 montre la dispersion des polaritons calculée pour un désaccord de $+3 \text{ meV}$, et les points expérimentaux, indiqués par les symboles, suivent bien la courbe de dispersion. Nous avons ensuite étudié l'influence du désaccord et effectué des mesures aux désaccords -8 et $+10 \text{ meV}$.

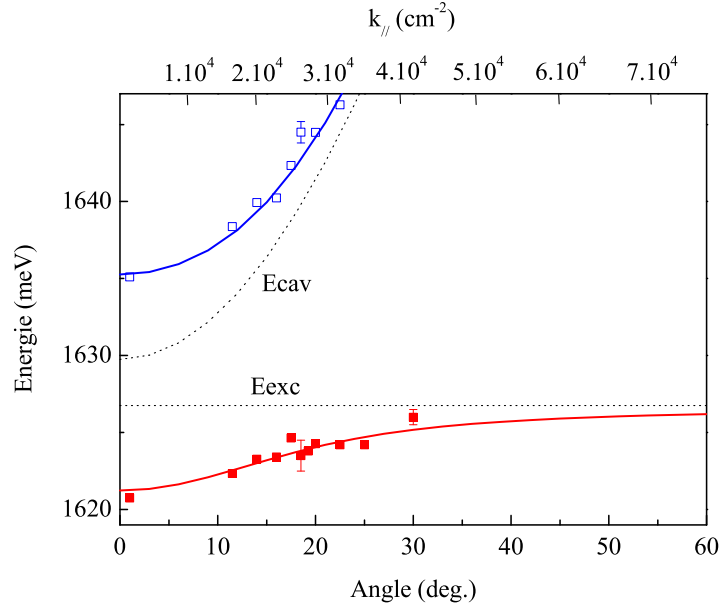


Fig. 5.8: Dispersion en énergie des polaritons pour un désaccord de 3 meV, calculée d'après le modèle d'oscillateurs couplés (traits plein), et mesurée en réflectivité (symboles). Les dispersions de l'exciton et de la cavité sont en pointillés. La réponse de mélange à quatre ondes est mesurée pour chaque état (E , $\vec{k}_{//}(\theta)$), car les faisceaux incidents de direction \vec{k}_1 et \vec{k}_2 et le faisceau de mélange à quatre ondes de direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ sont résonants avec cet état.

5.2.2 Résultats expérimentaux

Le signal de Ti-FWM a la même allure que celui mesuré en incidence normale : la figure 5.9 en montre quelques exemples à plusieurs angles d'incidence pour un désaccord de +3 meV et pour une densité de porteurs constante de 5.10^9 cm^{-2} . Pour conserver cette densité de porteurs, la puissance a été ajustée, variant de 3 W/cm^{-2} à faible incidence, jusqu'à 10 W/cm^{-2} pour 25° . Les mesures de réflectivité montrent que le système reste toujours en couplage fort.

La figure 5.10 montre les valeurs du temps de cohérence T_2 en fonction de l'angle, mesuré pour deux densités de porteurs, $n = 1.10^9 \text{ cm}^{-2}$ et $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$. Nous voyons que dans les deux cas, la valeur de T_2 reste constante jusqu'à 16° , puis diminue doucement aux grands angles. On obtient des valeurs de T_2 plus petites pour la densité de porteurs la plus élevée en raison du déphasage induit par l'excitation : pour $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$, T_2 passe de 1,5 ps aux petits angles à 0,5 ps aux grands angles, tandis que pour $n = 1.10^9 \text{ cm}^{-2}$, T_2 diminue jusqu'à des valeurs de 0,8 ps seulement.

Enfin, des mesures ont été faites à un désaccord de -8 meV et $+10 \text{ meV}$, à la densité d'excitation d'environ $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$. La figure 5.11 montre les temps

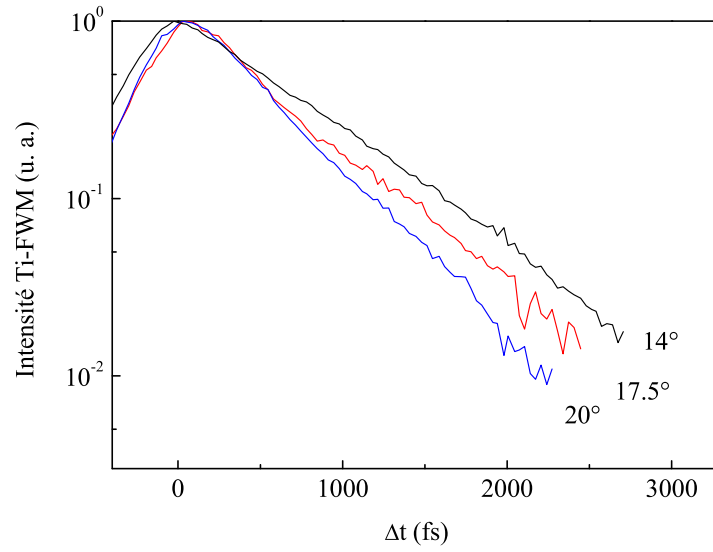


Fig. 5.9: Signal de Ti-FWM en fonction du retard entre les deux impulsions pour différents angles, indiqués sur la figure, et pour une densité de porteurs de 5.10^9 cm^{-2} . Le désaccord est de $+3 \text{ meV}$.

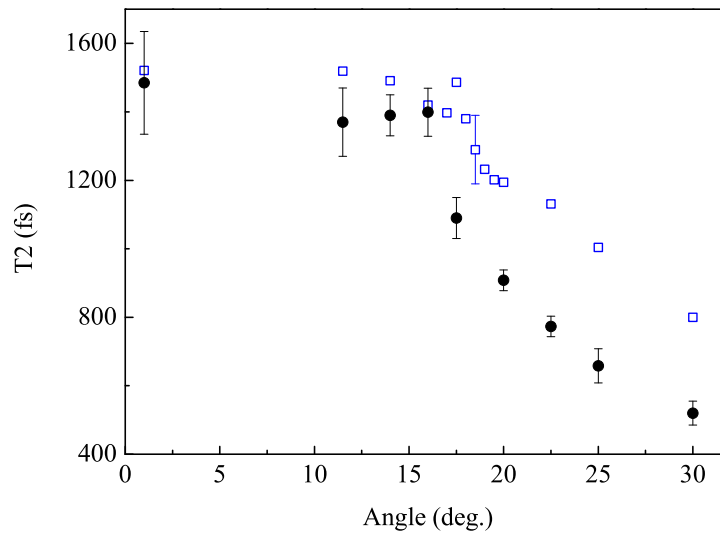


Fig. 5.10: Temps de cohérence T_2 en fonction de l'angle d'incidence pour une densité de porteurs injectés de 5.10^9 cm^{-2} (symboles fermés) et 1.10^9 cm^{-2} (symboles ouverts), en couplage fort.

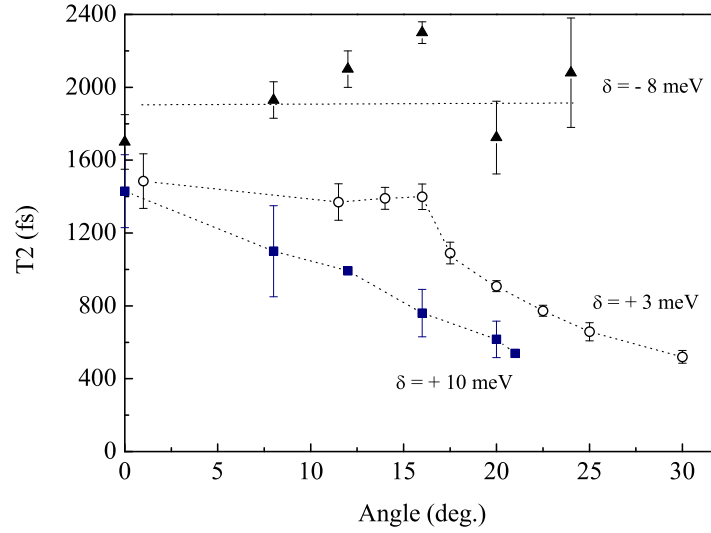


Fig. 5.11: Temps de cohérence T_2 en fonction de l'angle d'incidence pour une densité de porteurs injectés de $5 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$, pour plusieurs désaccords.

de cohérence obtenus : le temps T_2 décroît régulièrement avec l'angle d'incidence pour $\delta = +10 \text{ meV}$, tandis que pour $\delta = -8 \text{ meV}$, il reste à peu près constant.

5.2.3 Modélisation

Pour analyser ces résultats, nous allons rester dans le même cadre théorique que celui utilisé au § 5.1.3. Nous examinons maintenant la situation où deux polaritons injectés à un vecteur d'onde \vec{k}_p sont diffusés en $\vec{k}_p + \vec{q}$ et $\vec{k}_p - \vec{q}$. Dans une première partie, nous allons simplement discuter ce qu'implique la conservation du vecteur d'onde dans le plan, dans le cas d'une conservation stricte de l'énergie (polariton de largeur négligeable). Puis nous montrerons comment le modèle utilisé en incidence normale peut être généralisé à une excitation en angle. Enfin, nous comparerons les résultats à cette théorie.

Introduction : diffusion de deux polaritons

En premier lieu, examinons simplement la diffusion de deux polaritons, excités en résonance à un certain angle. Soit \vec{k}_p le vecteur d'onde dans le plan des polaritons basse énergie injectés à l'angle correspondant θ . On décompose les vecteurs d'onde dans le plan $\vec{k}_{//}$ selon les axes $\{k_x, k_y\}$. On peut choisir ces derniers tels que \vec{k}_p ait comme coordonnées $(k_p, 0)$. La diffusion de deux polaritons de vecteur d'onde \vec{k}_p en un polariton de vecteur d'onde \vec{k}_1 et un autre de vecteur d'onde \vec{k}_2 doit conserver l'énergie et le vecteur d'onde soit :

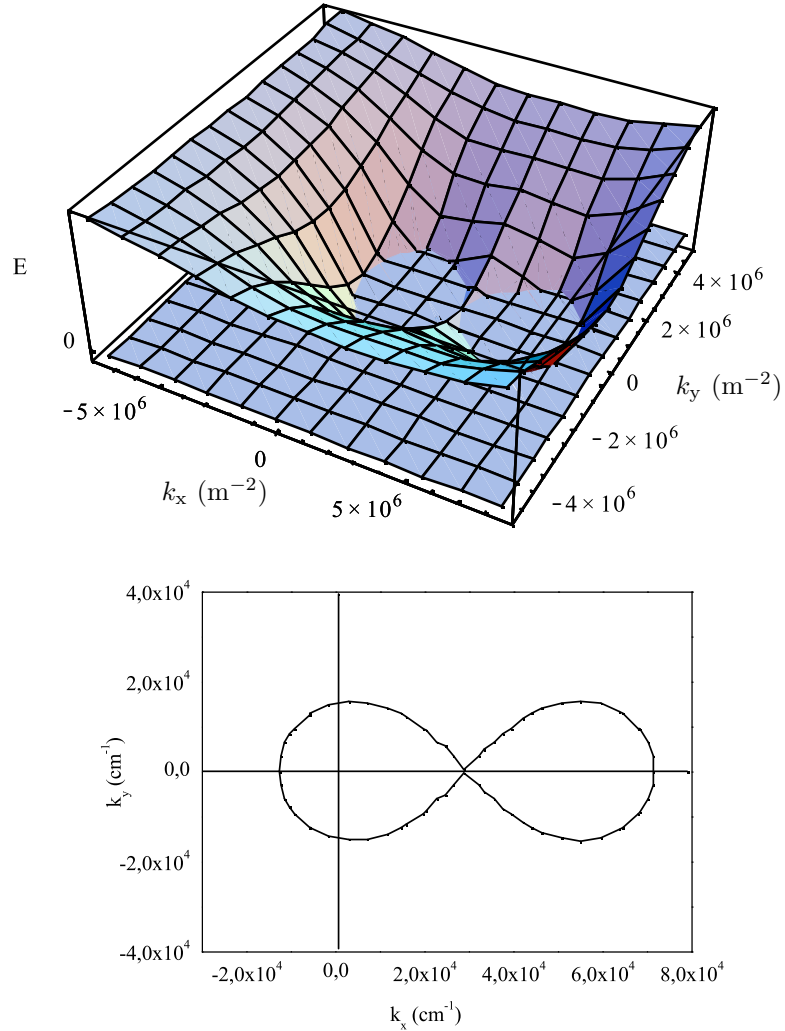


Fig. 5.12: Intersection de la surface $\mathcal{A}(k_x, k_y) = E(k_x, k_y) + E(2\vec{k}_p - k_x, -k_y) - 2E(k_p, 0)$ et $E = 0$, dans l'espace (figure du haut) et dans le plan $\{k_x, k_y\}$ (figure du bas). La courbe en huit de chiffre correspond à l'ensemble des vecteurs d'onde des états finals de la diffusion de deux polaritons de vecteur d'onde k_p (centre du huit de chiffre). La dispersion du polariton basse énergie $E(k_x, k_y)$ est calculée pour un désaccord de $+3 \text{ meV}$.

$$2\vec{k}_p = \vec{k}_1 + \vec{k}_2$$

$$2E(\vec{k}_p) = E(\vec{k}_1) + E(\vec{k}_2)$$

soit encore

$$2E(\vec{k}_p) = E(\vec{k}_1) + E(2\vec{k}_p - \vec{k}_1)$$

En posant (k_x, k_y) les coordonnées de \vec{k}_1 , l'ensemble des vecteurs d'ondes \vec{k}_1 qui peuvent convenir comme états finals se trouvent à l'intersection de la surface $\mathcal{A}(k_x, k_y) = E(k_x, k_y) + E(2\vec{k}_p - k_x, -k_y) - 2E(k_p, 0)$ et du plan $E = 0$. La figure 5.12 représente cette intersection lorsque le vecteur d'onde initial est $k_p = 3.10^4 \text{ cm}^{-1}$, correspondant à un angle d'incidence de 21° (le désaccord est de 3 meV). Les états finals accessibles se situent sur une courbe en « huit de chiffre », montrant que les polaritons peuvent être diffusés hors du plan initial $k_y = 0$.

On appelle *angle magique* l'angle d'excitation qui permet de peupler l'état $\vec{k}_{//} = 0$, c'est-à-dire lorsque le « huit de chiffre » croise l'axe k_x en 0 (cf. fig. 5.13). Cet angle joue un rôle très particulier dans les processus d'émission stimulée discutés dans l'introduction, et dont il sera à nouveau question dans le paragraphe 5.5. La valeur de l'angle magique est minimum pour un désaccord nul. Pour un désaccord de 3 meV, le calcul donne ainsi un angle magique d'environ 16° en prenant un indice effectif de 2,875.

Dans le cadre d'une conservation stricte de l'énergie, on montre aussi que la diffusion de deux polaritons n'est possible que pour des polaritons injectés à

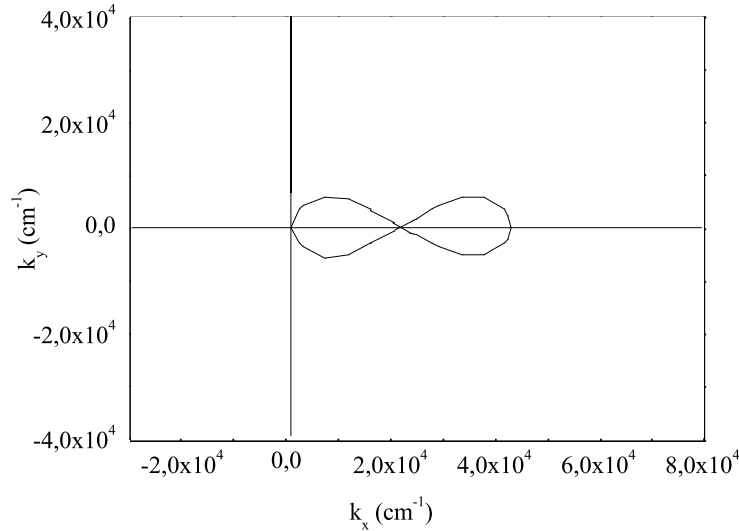


Fig. 5.13: Ensemble des vecteurs d'onde $\{k_x, k_y\}$ correspondant aux états finals de la diffusion de deux polaritons injectés à l'angle magique.

des angles supérieurs à l'angle magique. À un angle inférieur, la conservation de l'énergie est impossible à cause de la courbure trop importante de la dispersion.

Modèle et prédiction du modèle

Nous généralisons ici le modèle présenté au § 5.1.3. Nous excitons en résonance la branche basse du polariton à un angle donné c'est-à-dire à un vecteur d'onde donné \vec{k}_p . La situation du § 5.1.3 devient donc un cas particulier où $\vec{k}_p = 0$. La diffusion qui intervient est maintenant celle de deux polaritons de vecteur d'onde \vec{k}_p , vers un polariton de vecteur d'onde $\vec{k}_p - \vec{q}$ et un autre de vecteur d'onde $\vec{k}_p + \vec{q}$. L'élargissement du polariton de basse énergie de vecteur d'onde \vec{k}_p est alors donné par l'équation implicite suivante :

$$\Gamma - \Gamma_0 = \frac{4\hbar^4}{\pi^4 \mu^2} n \int_0^\infty [dq q F_q |X_{k_p-q}|^2 |X_{k_p+q}|^2 |X_{k_p}|^4 \times \mathcal{L}(2E_{k_p} - E_{k_p-q} - E_{k_p+q}, 4\Gamma)] \quad (5.3)$$

où $\mathcal{L}(E, \gamma)$ est toujours la lorentzienne définie par l'équation 5.2. $|X_{k_p}|^4$ donne la fraction excitonique pour les deux polaritons initiaux, et $|X_{k_p-q}|^2 |X_{k_p+q}|^2$, celle pour les polaritons dans l'état final. La fonction F_q ne change pas car elle ne dépend que du transfert de vecteur d'onde q .

Nous pouvons calculer l'élargissement du polariton de basse énergie pour différents vecteurs d'onde incidents \vec{k}_p . La figure 5.14 montre le résultat du calcul pour plusieurs désaccords, à une densité de porteurs constante égale à $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$.

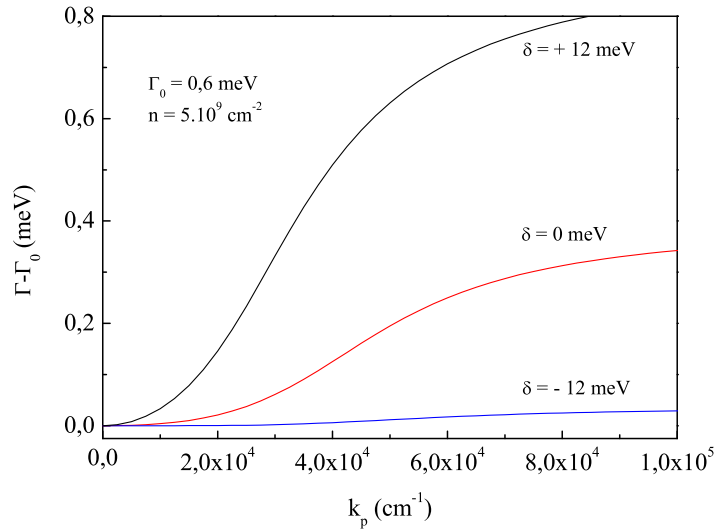


Fig. 5.14: Élargissement collisionnel en fonction du vecteur d'onde incident. Influence du désaccord : le seuil au-delà duquel l'élargissement collisionnel est activé diminue lorsque le désaccord augmente.

D'une part, nous trouvons bien une dépendance en seuil avec le vecteur d'onde d'incidence, donc avec l'angle. L'interprétation est la suivante. À faible incidence, en raison de la largeur finie du polariton, la conservation de l'énergie ne permet d'atteindre que les états de centre de zone, possédant une faible densité d'état. L'élargissement est alors négligeable car peu d'états finals sont disponibles. À partir d'un certain angle, les états excitoniques du réservoir peuvent être accessibles à l'intérieur de la largeur de la lorentzienne, et les polaritons s'échappent du puits de potentiel. L'élargissement collisionnel est alors activé.

D'autre part, nous trouvons une dépendance du seuil avec le désaccord exciton-photon δ . Plus le désaccord δ est grand (et positif), moins la dispersion est creusée autour de $k = 0$, et l'angle seuil pour lequel les polaritons peuvent atteindre les états du réservoir par diffusion est plus petit.

Cet élargissement collisionnel fonction de l'angle d'incidence est le pendant de l'élargissement fonction de la densité d'excitation, et est bien expliqué dans le même formalisme.

Comparaison théorie-expérience

À partir des mesures du temps de cohérence, nous déduisons la largeur spectrale du polariton excité à l'angle θ ($\Gamma = 2\hbar/T_2$). Pour obtenir l'élargissement, nous devons connaître la largeur homogène Γ_0 du polariton. Nous la mesurons par réflectivité à très basse puissance, pour chaque angle. Nous tenons compte ainsi de la faible variation de la largeur de la raie au fur et à mesure que l'angle d'incidence augmente, variation due au changement du poids exciton-photon pour le polariton (cf. § 1.3.3).

Nous calculons à présent l'élargissement collisionnel pour une densité d'excitation n fixée, lorsque le vecteur d'onde k_p des polaritons injectés varie, c'est-à-dire lorsque l'angle d'incidence varie. Pour le désaccord de +3 meV, les courbes théoriques correspondant aux densités de porteurs expérimentales sont représentées à la fig. 5.15. Les paramètres pour l'ajustement sont très proches de ceux de l'expérience : le dédoublement de Rabi est pris égal à 12 meV, $\Gamma_0 = 0,6$ meV, l'indice effectif de la cavité est $n_{\text{cav}} = 2,5$ et le désaccord est de +3 meV. Qualitativement, l'accord est parfait : on reproduit bien la forme des courbes ainsi que l'angle seuil au-delà duquel l'élargissement collisionnel est activé. Néanmoins, comme dans le cas de l'excitation en incidence normale, la valeur absolue de l'élargissement calculé est légèrement différente de la mesure (facteur 5).

Ces deux résultats à désaccord $\delta = +3$ meV montrent aussi l'influence de la densité de porteurs : on constate que le seuil est le même, mais une densité de porteurs grande induit un élargissement plus grand, surtout aux grands angles.

Nous pouvons vérifier l'effet du désaccord discuté précédemment. Les résultats aux désaccords $\delta = -8$ meV, +3 meV et +10 meV mesurés à la densité de porteurs $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$ sont comparés au modèle avec les mêmes paramètres

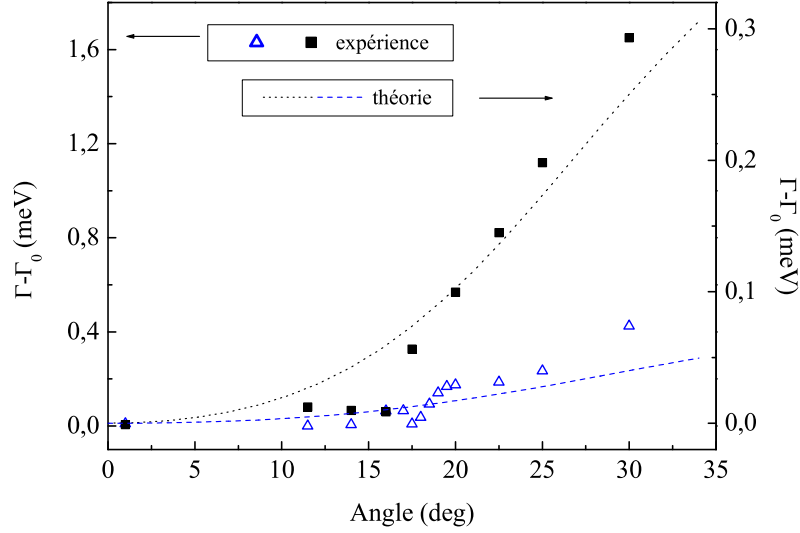


Fig. 5.15: Élargissement collisionnel en fonction de l'angle d'incidence pour un désaccord de +3 meV. Symboles : résultats expérimentaux (symboles ouverts : $n = 1.10^9 \text{ cm}^{-2}$, symboles fermés : $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$) et lignes : théorie. Les paramètres du calcul sont pour les deux cas : $\delta = +3 \text{ meV}$, $\Omega = 12 \text{ meV}$, $\Gamma_0 = 0,6 \text{ meV}$, $n_{\text{cav}} = 2,5$ et les densités de porteurs sont $n = 1.10^9 \text{ cm}^{-2}$ (en tirets) et $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$ (pointillés).

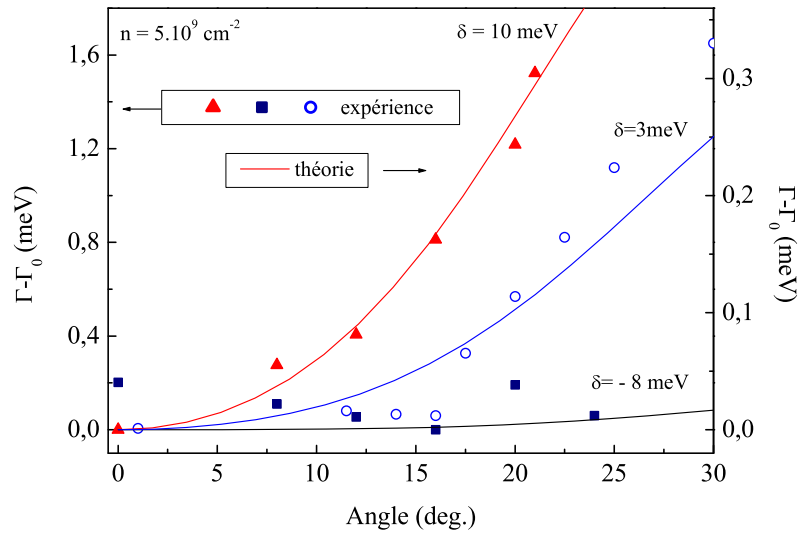


Fig. 5.16: Élargissement collisionnel en fonction de l'angle d'incidence, à la densité d'excitation $n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$. Symboles : résultats expérimentaux et traits continus : théorie ($n = 5.10^9 \text{ cm}^{-2}$, $\Omega = 12 \text{ meV}$, $\Gamma_0 = 0,6 \text{ meV}$, $n_{\text{cav}} = 2,5$ et les désaccords sont ceux de l'expérience).

que précédemment, sur la figure 5.16. L'accord qualitatif est encore excellent : le seuil diminue lorsque le désaccord δ augmente. Pour un désaccord négatif, la dispersion est trop creusée en centre de zone et les polaritons excités même à grand angle ne parviennent pas à atteindre les états du réservoir : l'élargissement collisionnel reste faible, aucun seuil n'apparaît.

5.3 Élargissement collisionnel à angle constant

5.3.1 Résultats expérimentaux

Pour un angle donné, nous examinons ici la dépendance du temps de cohérence avec la densité de porteurs, c'est-à-dire avec la puissance incidente. Ces mesures ont été faites sur la microcavité M1159 à un désaccord de $+3$ meV. Pour plus de clarté, la figure 5.17 montre les mesures de T_2 en fonction de la puissance incidente pour 4 angles seulement.

En régime de couplage fort, nous observons une forte dépendance en angle. Pour tous les angles d'incidence, le temps de cohérence diminue lorsque la puissance d'excitation augmente. Nous remarquons aussi que T_2 diminue peu à basse puissance, puis plus rapidement à partir d'un certain seuil de puissance d'excitation.

Lorsque la puissance atteint environ 40 W/cm², les mesures de réflectivité montrent que l'on atteint le régime de couplage faible. Plus précisément, la puissance à laquelle s'effectue la transition du couplage fort vers le couplage faible dépend de l'angle. Elle ne varie pas beaucoup pour les angles entre 14° et 20° , (de l'ordre de 40 W/cm²), mais elle est plus grande pour l'angle nul (200 W/cm²)¹. C'est pourquoi, pour la lisibilité de la figure, la courbe de résultats à l'angle nul a été placée sur une autre échelle de puissance de manière à placer la transition vers le couplage faible au même endroit. En régime de couplage faible, le temps de cohérence diminue de la même manière pour tous les angles. Le signal de mélange à quatre ondes est alors dû à l'exciton du puits quantique possédant une dispersion plate, et filtré par la cavité ; aucune dépendance en angle n'est attendue.

¹ En terme de densités de porteurs, la transition vers le couplage faible se fait à une densité de porteurs qui diminue avec l'angle (8.10^{11} cm⁻² à angle nul, 2.10^{11} cm⁻² à 14° , 3.10^{10} cm⁻² à 17° , 2.10^{10} cm⁻² à 19°). Nous avons vu qu'à densité de porteurs constante, l'élargissement de la raie du polariton, et ainsi sa largeur sont plus importants au fur et à mesure que l'angle d'incidence augmente. Un élargissement suffisant des raies conduit à la transition vers le couplage faible (cf. § 1.3.2). Celui-ci est donc atteint à plus basse densité de porteurs pour des grands angles.

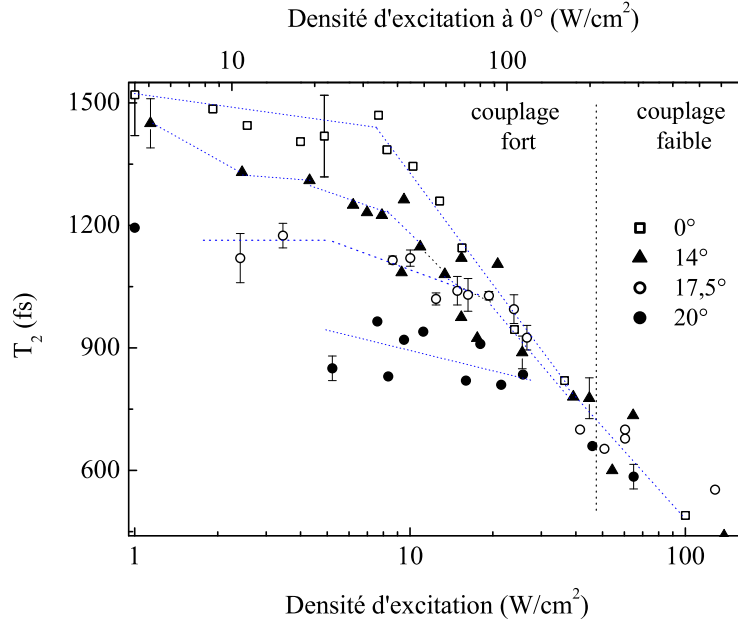


Fig. 5.17: Temps de cohérence T_2 mesuré à un désaccord de 3 meV en fonction de la puissance incidente pour les angles 0° (axe des abscisses du haut), 14°, 17,5° et 20° (axe des abscisses du bas). Les pointillés sont un guide pour la lisibilité de la figure.

5.3.2 Comparaison théorie-expérience

Nous modélisons ici les mesures du temps de cohérence pour différentes puissances d'excitation, à un angle d'excitation donné, que nous venons d'exposer. La largeur du polariton est déduite grâce au temps de cohérence, et nous prenons toujours pour Γ_0 la largeur du polariton à l'angle considéré à très basse puissance.

Nous calculons l'élargissement collisionnel sur la base du modèle du § 5.2.3, pour un vecteur d'excitation k_p correspondant à l'angle d'incidence. Nous faisons alors varier la densité de porteurs. La figure 5.18 montre la confrontation des résultats expérimentaux avec le calcul de l'élargissement, pour les angles 11,5°, 14°, 16°, et 17,5°. Les paramètres sont les mêmes que dans le paragraphe précédent 5.2.3 ($\Omega = 12$ meV, $\Gamma_0 = 0,6$ meV, $n_{\text{cav}}=2,5$ et $\delta = +3$ meV). Les calculs reproduisent bien l'élargissement collisionnel expérimental.

Notons d'emblée que l'on retrouve la dépendance en seuil attendue : l'élargissement collisionnel est négligeable pour de faibles densités de porteurs, puis devient plus important lorsque le réservoir excitonique devient accessible. Ce seuil est de plus en plus faible lorsque l'angle d'incidence augmente, puisque les polaritons injectés sont de plus en plus proches énergétiquement du réservoir. Les angles

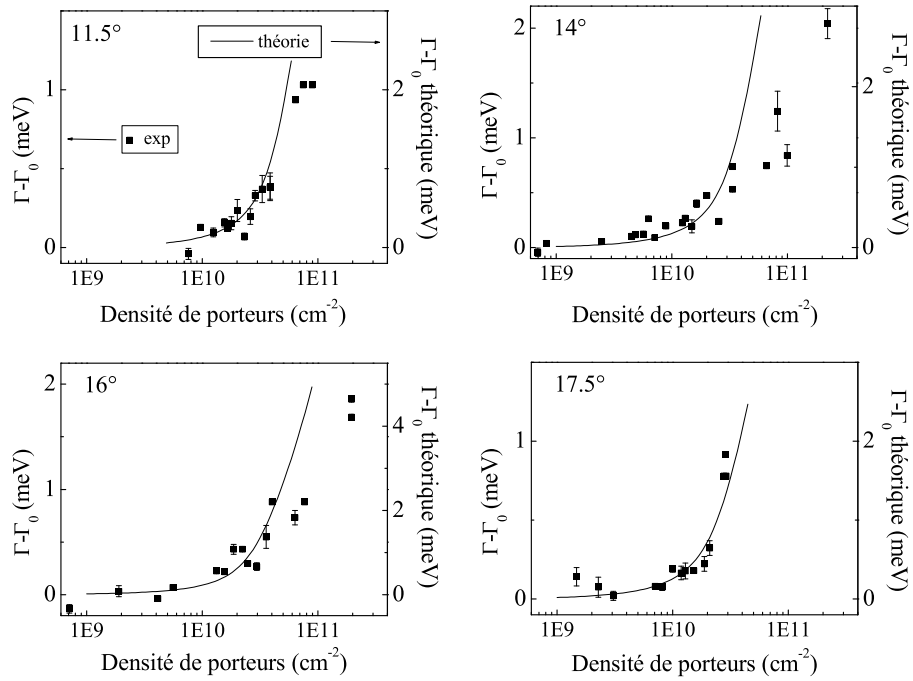


Fig. 5.18: Élargissement collisionnel en fonction de la densité de porteurs pour les angles d'incidence 11,5°, 14°, 16°, et 17,5°. Symboles : résultats expérimentaux, échelle à gauche, et lignes continues : théorie, échelle à droite.

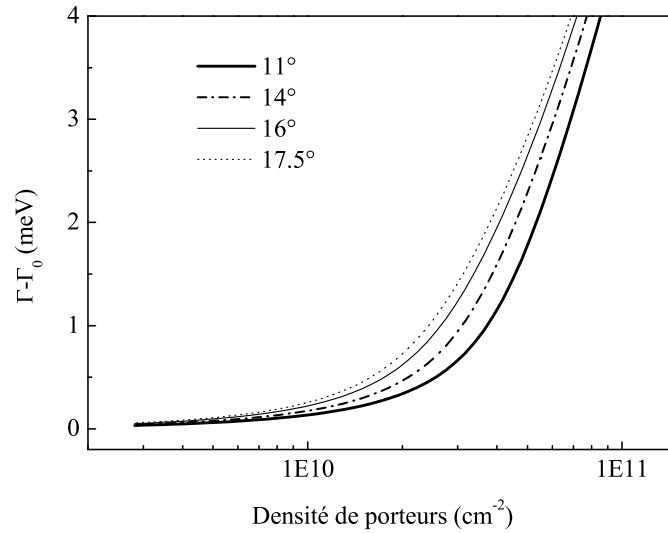


Fig. 5.19: Élargissement collisionnel théorique en fonction de la densité de porteurs pour les angles d'incidence 11,5°, 14°, 16°, et 17,5°.

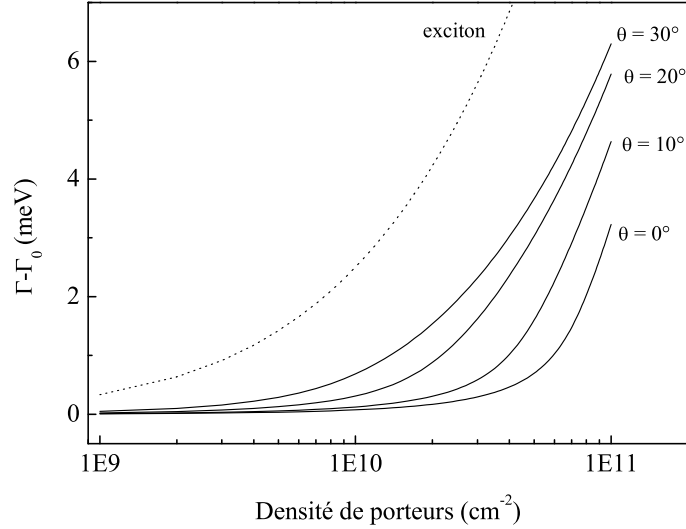


Fig. 5.20: Élargissement collisionnel théorique en fonction de la densité de porteurs pour plusieurs angles d'incidence.

où nous avons effectué les mesures sont assez proches et les seuils ne sont pas très différents (cf. fig. 5.19). La variation du seuil avec l'angle est mieux marquée sur la figure 5.20 où sont reportées des courbes théoriques pour des angles plus espacés. Le cas de l'exciton nu est rappelé pour comparaison : plus l'angle d'incidence est grand, plus le seuil diminue et plus on se rapproche de la situation de l'exciton nu. En effet, le polariton excité a une fraction excitonique de plus en plus importante.

5.4 Conclusion

Dans ces trois premiers paragraphes, nous avons calculé l'élargissement de la raie du polariton basse énergie en adaptant un modèle fondé sur la diffusion polariton-polariton afin d'interpréter les mesures angulaires de temps de cohérence. Nous montrons que nous reproduisons bien l'élargissement en fonction de la densité de porteurs à angle nul, comme Baars *et al.* [128] l'avaient fait sur une microcavité III-V. Nous mettons en évidence l'existence d'un seuil, à partir duquel les polaritons peuvent s'échapper du piège que forme la dispersion en centre de zone, et atteindre les états du réservoir où la densité d'états est très grande. Cela conduit à une activation de l'élargissement. Lorsque le piège est trop profond (comme c'est par exemple le cas ici à un désaccord négatif de -7 meV), le seuil n'est pas atteint et l'élargissement demeure très faible.

Nous avons étendu le modèle au calcul de l'élargissement en fonction de la densité de porteurs pour un angle non nul. Le seuil est ainsi atteint plus vite,

puisque l'état sondé est plus proche énergétiquement du réservoir.

D'autre part, le modèle permet aussi d'expliquer une situation inverse : la mesure du temps de cohérence à une densité d'excitation donnée en fonction de l'angle. Nous sondons ainsi la courbe de dispersion du polariton. Le même cadre théorique convient également. Nous trouvons un comportement en seuil aussi : à partir d'un certain angle, le réservoir excitonique est accessible pour les états finals de la diffusion, et l'élargissement collisionnel est de nouveau accéléré. Lorsque l'excitation s'effectue à des angles de plus en plus grands, le seuil diminue car le polariton excité, dont la fraction excitonique est de plus en plus importante, est de plus en plus proche du réservoir. On se rapproche du cas de l'exciton, pour lequel l'élargissement est régulier.

Notons enfin que la comparaison théorie-expérience est qualitativement excellente dans tous les cas de figure, mais cependant imparfaite quant à la valeur absolue (facteur 4 ou 5 de différence). Rappelons que Baars *et al.* [128] n'obtiennent eux aussi qu'un accord qualitatif. Il semble clair que la phénoménologie de l'élargissement collisionnel tient essentiellement à la forme particulière en « S » de la dispersion, à la variation du poids excitonique du polariton en fonction de \vec{k} et à une interaction répulsive entre polaritons. Cela est très bien pris en compte dans le modèle. En revanche, le calcul de l'élément de matrice F_q est fait dans le cadre d'approximations qui peuvent être largement discutées. On suppose que les collisions se font entre deux polaritons uniquement, dans un système parfaitement bidimensionnel, ce qui est très simplifié par rapport à la complexité du problème à N corps. En particulier, ne sont pris en compte ni effet d'écrantage, ni blocage de Pauli, qui ne peuvent être négligés à forte excitation (cf. chap. 4). Un calcul rigoureux des interactions entre excitons vient notamment d'être élaboré par M. Combescot *et al.* [138, 139, 140]. Ce travail souligne en particulier quelques problèmes liés au calcul de l'élément de matrice d'interaction entre excitons par Ciuti *et al.*.

Jusqu'à présent, nous avons étudié la dynamique cohérente pour de grandes variations d'angles (entre 0° et 30°). Toutefois, comme l'introduction de ce chapitre le rappelle, la dynamique des polaritons peut être fortement modifiée lorsque l'on excite le système spécifiquement à l'angle magique (émission stimulée ou amplification paramétrique). Dans le paragraphe suivant, nous nous concentrons sur ce problème grâce à une excitation plus précise autour de l'angle magique.

5.5 Régime de stimulation

5.5.1 Introduction

Comme nous l'avons rappelé en introduction, un phénomène de stimulation de la photoluminescence du polariton de basse énergie, au-delà d'une certaine puissance d'excitation, est observé dans les microcavités II-VI, sous l'effet d'une

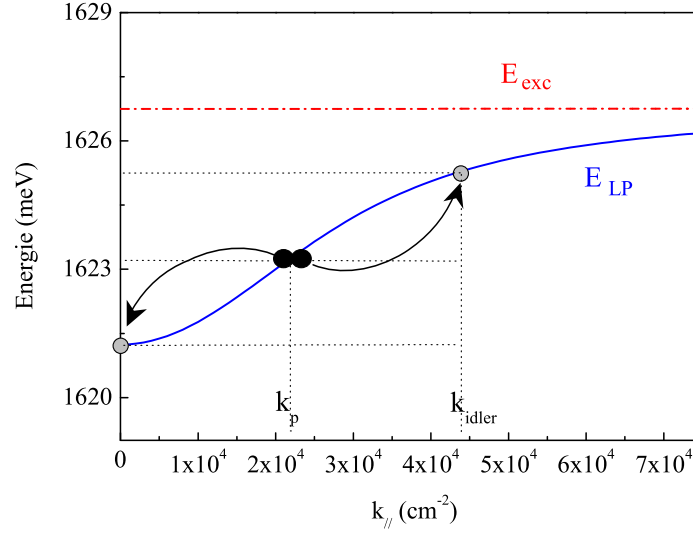


Fig. 5.21: Dispersion en énergie du polariton de basse énergie (E_{LP}) pour un désaccord de 3 meV, calculée d'après le modèle d'oscillateurs couplés. La diffusion de deux polaritons injectés à l'angle magique, vers un polariton en $k_{//} = 0$ et un polariton à grand $k_{//}$ est représentée schématiquement.

excitation non-résonante à haute énergie [26].

Dans le cas d'une excitation résonante, les expériences de pompe-sonde de Savvidis *et al.* [27] ont clairement souligné le rôle particulier que joue l'angle magique dans ces processus d'émission stimulée. Dans ces expériences, un faisceau pompe injecte des polaritons au voisinage du point d'inflexion de la dispersion du polariton de basse énergie, avec le vecteur d'onde k_p . Deux polaritons de « pompe » peuvent alors être diffusés efficacement en un polariton en $k_{//} = 0$, et un polariton à $2k_p$ (« complémentaire »), tout en conservant à la fois l'énergie et l'impulsion (cf. § 5.2.3 et fig. 5.21). Un faisceau sonde, peuplant suffisamment les états en $k_{//} = 0$, est à même de stimuler ce mécanisme. Il en résulte une amplification de la sonde, qui s'accompagne d'un déplacement de la raie vers le bleu.

En excitation continue ou pulsée et en résonance [30, 31, 32, 33, 34], le même phénomène de stimulation peut être observé sans l'introduction supplémentaire d'un faisceau sonde, si suffisamment de polaritons issus de la pompe se sont accumulés en $k_{//} = 0$. Il est alors auto-stimulé, comme dans le cas d'une excitation hors résonance, à haute énergie.

Toutes ces caractéristiques ont été expliquées théoriquement par Ciuti *et al.* [125] et Whittaker [131] en terme d'amplification ou d'oscillation paramétrique. Le décalage vers le bleu est dû à une renormalisation des énergies en raison de l'interaction coulombienne entre polaritons.

Avant d'effectuer l'expérience de mélange à quatre ondes sous excitation à l'angle magique, il est nécessaire de caractériser le régime de stimulation dans nos échantillons. Dans un premier temps, nous effectuons une mesure de l'intensité de la photoluminescence sous excitation continue et hors résonance (§ 5.5.2). Ensuite, nous nous plaçons dans les conditions expérimentales exactes de l'expérience de mélange à quatre ondes à réaliser, pour mesurer l'intensité de la photoluminescence sous excitation pulsée (§ 5.5.3). Nous caractérisons ainsi le régime de stimulation, en particulier, nous mesurons le seuil correspondant à son apparition.

5.5.2 Excitation continue et hors résonance

Expériences et résultats

Nous excitons la microcavité à l'aide d'un laser continu à Argon ionisé, émettant à la longueur d'onde de 514 nm. L'énergie du laser est alors de 2,41 eV, et se situe au-delà de la bande hautement réfléchissante des miroirs de Bragg ; la lumière est facilement absorbée dans le continuum de l'exciton, et l'angle d'incidence importe peu. Afin d'avoir une détection sélective, et de mesurer uniquement l'émission en $k \approx 0$, nous plaçons un diaphragme qui permet de sélectionner un petit angle solide autour de la normale à l'échantillon. Nous avons travaillé à faible puissance, en s'assurant que le couplage fort était préservé.

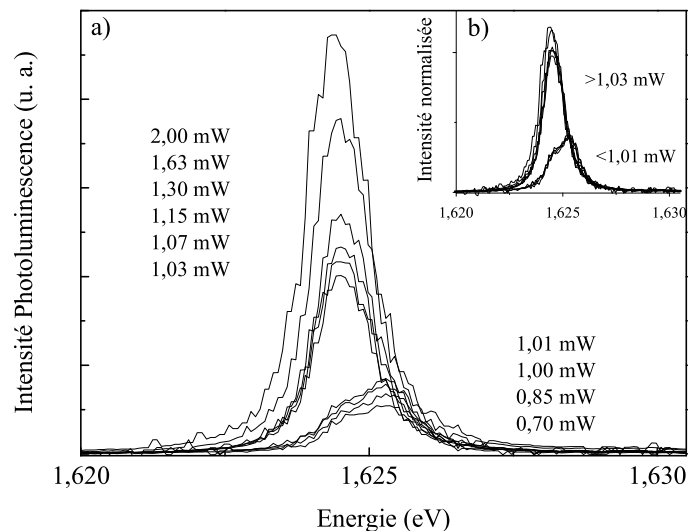


Fig. 5.22: a) : Spectres de photoluminescence en excitation non-résonante avec un laser à Argon, dont les puissances successives sont indiquées. b) Spectres normalisés par la puissance du laser de pompe.

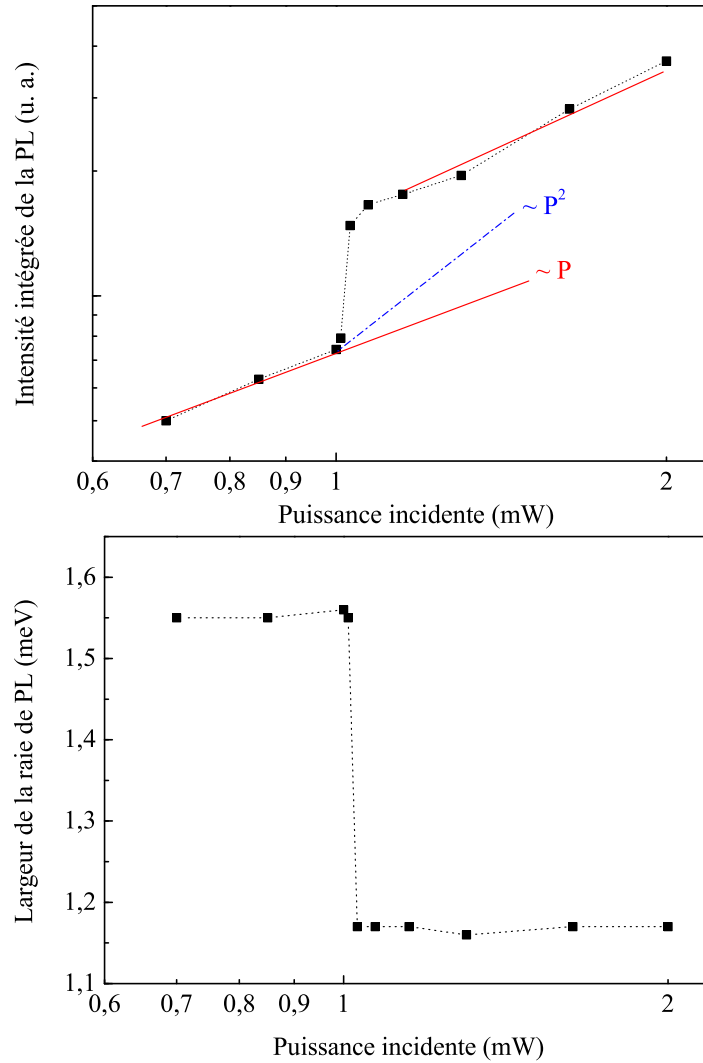


Fig. 5.23: Intensité intégrée (fig. du haut) et largeur spectrale (fig. du bas) des spectres de photoluminescence (PL) sous excitation non-résonante avec un laser à Argon continu, en fonction de la puissance incidente.

La figure 5.22 (figure a) présente les spectres de photoluminescence bruts, lorsque la microcavité est excitée à un désaccord presque nul. Un seul pic apparaît à l'énergie du mode de basse énergie. À une puissance seuil du laser de pompe d'environ $P_0 \approx 1$ mW, l'intensité de la photoluminescence devient beaucoup plus grande (tout en se déplaçant légèrement vers les basses énergies).

En normalisant les spectres par la puissance incidente (fig. 5.22 b), on remarque un comportement quasi linéaire de la photoluminescence avant et après P_0 , avec une augmentation brutale de l'émission au niveau du seuil.

L'analyse est plus aisée en traçant l'intensité intégrée de la photoluminescence

(cf. fig. 5.23). En dessous de P_0 , l'intensité intégrée augmente linéairement avec la puissance, puis au voisinage du seuil, la croissance est fortement non-linéaire. Nous notons également un affinement des raies, de 1,55 à 1,17 meV au-niveau du seuil.

Analyse

Après avoir excité optiquement la microcavité à haute énergie, au-dessus de la bande interdite des miroirs, des paires électron-trou sont créées dans le continuum de l'exciton et forment rapidement des excitons par diffusion entre porteurs ou avec les phonons. Ces excitons peuplent essentiellement la zone non radiative à grand vecteur d'onde. À faible puissance d'excitation, la relaxation vers les états en $k \approx 0$ peut se faire par interaction avec les phonons acoustiques, ce qui conduit à une dépendance linéaire de l'émission. À plus forte puissance d'excitation (sous le seuil de stimulation), la relaxation peut s'effectuer aussi par collision polariton-polariton, ce qui conduit *a priori* à une dépendance quadratique [30, 35, 130]. Au-delà du seuil, la stimulation par occupation de l'état final en $k_{//} = 0$ donne naissance à une non-linéarité plus forte, à un affinement de la raie et à un décalage de la raie vers le bleu [26, 141, 129, 35, 130].

La figure 5.23 montre clairement un effet de seuil, avec une variation non-linéaire, plus forte qu'une dépendance quadratique. Nous observons aussi l'affinement de la raie qui confirme une interprétation de cette expérience en terme d'émission stimulée. Quant au léger déplacement vers le rouge de la raie, et non pas comme attendu vers le bleu, nous l'attribuons à un léger échauffement de l'échantillon, qui est excité ici en continu, alors que l'excitation était pulsée dans les travaux précités [26, 92, 141]. En effet, une élévation de la température conduit à une réduction de l'énergie de bande interdite, et donc de celle de l'exciton et des polaritons.

Conclusion

En conclusion, il est possible d'obtenir dans notre échantillon de l'émission stimulée. Nous remarquons que l'augmentation de l'émission obtenue ici est beaucoup plus faible que celles observées par Bœuf *et. al.* [141]. L'intensité intégrée des courbes normalisées est multipliée par un facteur 30, tandis que le facteur n'est que de 2,2 dans notre cas. Cela s'explique entre autre par le fait que notre échantillon contient un petit nombre de puits quantiques (6 puits quantiques dans notre cas, 12 puits quantiques dans la réf. [141]) [92, 142].

5.5.3 Excitation résonante à l'angle magique

Dans cette seconde expérience de caractérisation, nous cherchons à obtenir le régime de stimulation par une excitation résonante à l'angle magique, dans les

conditions exactes de la mesure du signal de mélange à quatre ondes. L'excitation est alors constituée de deux impulsions excitatrices (avec un retard Δt nul), et le désaccord exciton-photon est de +3 meV.

L'intensité intégrée de l'émission (cf. fig. 5.24) augmente quadratiquement à basse puissance, puis subit une non-linéarité lorsque la puissance d'excitation

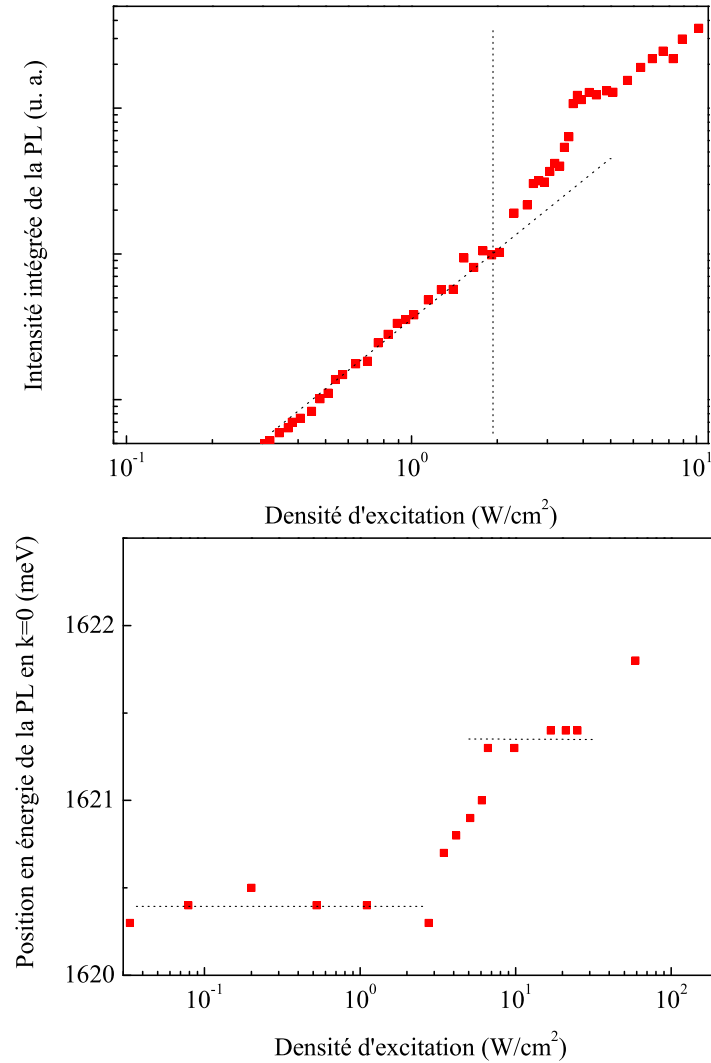


Fig. 5.24: Excitation résonante à l'angle magique pour un désaccord de 3 meV. Figure du haut : intensité intégrée de la photoluminescence en $k_{//} = 0$ en fonction de la puissance d'excitation. La figure insérée présente ces mesures refaites avec une résolution plus grande en puissance d'excitation. La ligne verticale indique le seuil en puissance au-delà duquel apparaît le régime de stimulation. Figure du bas : position de la raie de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation.

vaut environ 1 W/cm^2 : elle augmente alors très brusquement (cette brusque augmentation d'intensité liée à l'apparition du régime de stimulation se voit mieux sur la petite figure insérée, où les mesures ont été plus nombreuses, notamment autour du seuil). Elle varie ensuite quasi-linéairement.

De plus, nous observons ici un décalage de la raie vers le bleu de 1 meV (cf. fig. 5.24), qui se stabilise au-delà du seuil. Comme nous l'avons déjà expliqué, ce décalage vers le bleu provient de la renormalisation de l'énergie du polariton due aux interactions coulombiennes entre polaritons, et ne doit pas dépendre de la puissance de la pompe [124]. À plus forte intensité encore (70 W/cm^2), la raie se décale encore plus vers les hautes énergies, lorsque la cavité passe du régime de couplage fort à celui de couplage faible.

En conclusion, la non-linéarité observée correspond à l'apparition du régime de stimulation de l'émission. Le seuil correspondant se situe entre 2 et 3 W/cm^2 .

5.5.4 Temps de cohérence à l'angle magique

Exciter le système à l'angle magique nécessite une grande précision sur l'angle d'incidence. Dans cette partie, nous avons donc mesuré le signal de mélange à quatre ondes avec une résolution angulaire plus grande que précédemment (notamment entre 15° et 20°). La figure 5.25 montre le temps de cohérence T_2 en fonction de l'angle pour deux puissances d'excitation (à l'angle magique) : d'une part, 1 W/cm^2 (soit une densité de porteurs de 1.10^9 cm^{-2}), sous le seuil de stimulation, et d'autre part 4 W/cm^2 (5.10^9 cm^{-2}), au-dessus du seuil de stimulation.

Nous retrouvons pour les deux cas la diminution du temps de cohérence aux grands angles que nous avons étudiée au § 5.2.2. Pour la densité de porteurs de 5.10^9 cm^{-2} , une fine résonance autour d'un angle voisin de l'angle magique, $18,5^\circ$ se superpose à cette variation. Dans ce cas, le temps de cohérence chute brutalement jusqu'à la valeur de 660 fs . Comme nous l'avons vu, le modèle d'élargissement dû à la diffusion polariton-polariton ne prévoit aucune résonance à cet angle.

De plus, nous avons mesuré le temps de cohérence à l'angle de $18,5^\circ$ en fonction de la puissance incidente. La figure 5.26 montre les résultats obtenus et rappellent les valeurs du temps T_2 pour quelques autres angles. Contrairement à ces angles, que nous avons déjà étudiés, à $18,5^\circ$, T_2 diminue rapidement en-dessous de 2 W/cm^2 , c'est-à-dire au niveau du seuil de stimulation, et au-delà, reste constant sur plus d'un ordre de grandeur.

Cette dépendance de T_2 à l'angle de $18,5^\circ$ en fonction de la puissance d'excitation n'est pas expliquée par le modèle de diffusion polariton-polariton non plus. Le calcul, effectué avec les mêmes paramètres qu'au paragraphe précédent 5.3.2, est en complet désaccord avec les résultats expérimentaux (cf. fig. 5.27) : à basse densité de porteurs, au lieu d'un élargissement négligeable, les résultats expérimentaux montrent une croissance rapide puis une saturation à une valeur de 1 meV .

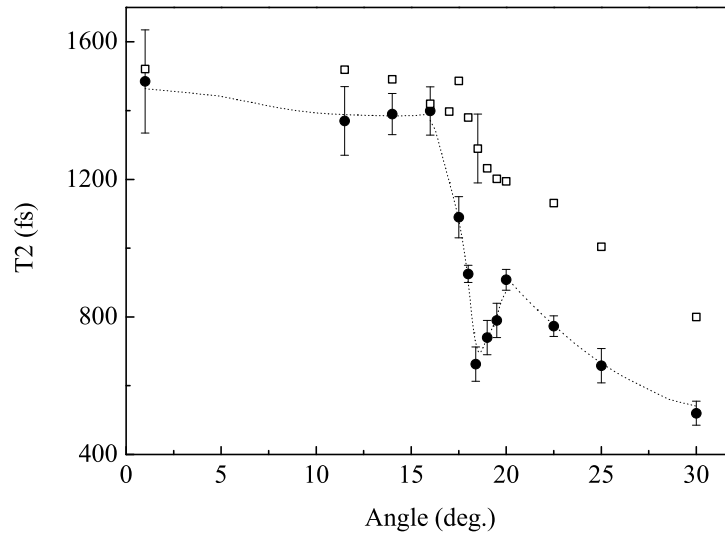


Fig. 5.25: Temps de cohérence T_2 en fonction de l'angle d'incidence pour une densité de porteurs injectés de 5.10^9 cm^{-2} (symboles fermés, la ligne est un guide pour l'œil) et 1.10^9 cm^{-2} (symboles ouverts).

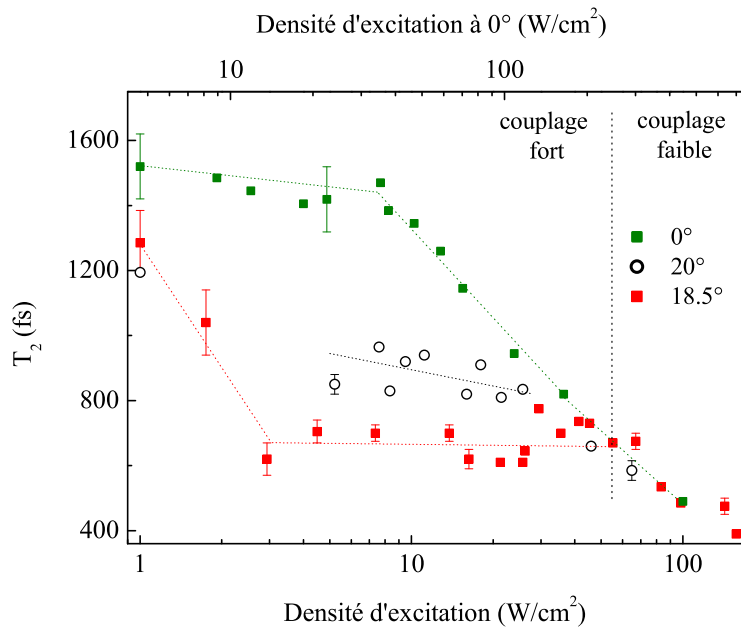


Fig. 5.26: Temps de cohérence T_2 mesuré à un désaccord de 3 meV en fonction de la puissance incidente pour les angles 0° , 14° , $18,5^\circ$, et 20° .

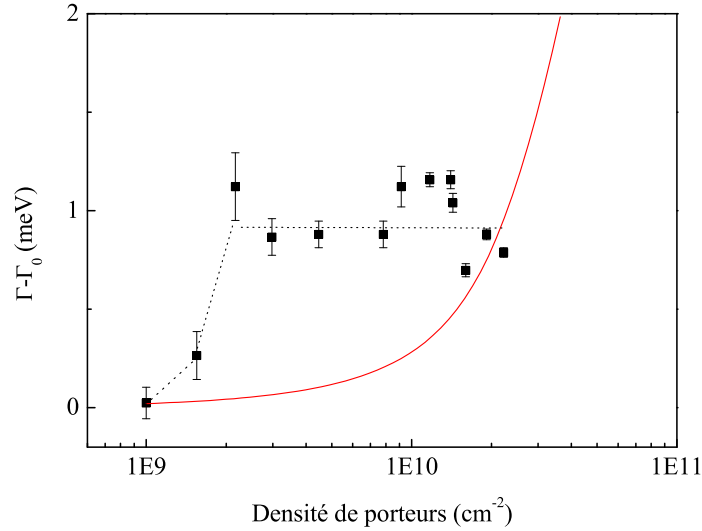


Fig. 5.27: Élargissement collisionnel en fonction de la densité de porteurs pour l'angle magique. Symboles : résultats expérimentaux et lignes : théorie

Ces deux caractéristiques, qui ne sont pas expliquées par le calcul de l'élargissement collisionnel, et qui apparaissent au-dessus du seuil de stimulation sont la première manifestation observée de la stimulation de la diffusion par l'occupation de l'état final dans la dynamique cohérente des polaritons photoexcités. On notera que, pour un indice effectif de cavité de 2,875, le calcul effectué au § 5.2.3 à ce désaccord donne un angle d'environ 16° . Il faudrait en réalité utiliser un indice plus élevé ($n_{\text{cav}} = 3$) pour trouver cette valeur de $18,5^\circ$. Cependant, nous verrons qu'en tenant compte de la renormalisation des énergies, l'angle magique correspond bien à une valeur plus élevée, proche de $18,5^\circ$ (cf. § suivant).

5.5.5 Discussion

Nous venons de mettre en évidence deux propriétés en régime de stimulation : une forte perte de cohérence à l'angle magique lorsque l'on atteint le seuil de stimulation, et d'autre part une saturation du temps de cohérence à une valeur très basse, au-delà du seuil. Nous avons montré que ces observations ne pouvaient être expliquées en terme de diffusion polariton-polariton, mais qu'elles étaient dues à la stimulation de la diffusion par l'occupation des états en $\vec{k}_{//} = 0$, qui peuvent aussi être interprétées dans un modèle d'oscillateur paramétrique [124, 125, 131].

Oscillateur paramétrique

L'oscillateur paramétrique optique (OPO), où la non-linéarité est du deuxième ordre (χ^2), transforme un photon d'énergie $\hbar\omega_0$ en deux photons, le signal d'énergie $\hbar\omega_s$ et le complémentaire d'énergie $\hbar\omega_c$. Le processus discuté ici est analogue, et les modèles développés pour les microcavités [125, 131] font appel à une non-linéarité d'ordre 3, qui a pour origine exclusivement les interactions coulombiennes. C'est le terme en $VP|P|^2$ décrit dans le chapitre 4. Remarquons que l'autre source de non-linéarité discutée au chapitre 4, le blocage de Pauli, qui est en $EP|P|^2$, donnerait la même phénoménologie. En effet, nous avons vu que dans la microcavité, le champ intracavité et la polarisation ont sensiblement la même dépendance temporelle.

Nous rappelons simplement ici que ce modèle d'oscillateur paramétrique prévoit qu'à partir du seuil, comme dans un laser, on atteint un régime où les pertes égalent le gain, entraînant ainsi une saturation de la population de la pompe. Lorsque la puissance de la pompe augmente au-delà du seuil, chaque polariton de pompe est converti en un polariton du signal ou un polariton du complémentaire, de manière à ce que le nombre de polaritons de la pompe reste constant. Ce phénomène est général (dans les lasers, les OPA et OPO) et traduit la déplétion de la pompe et la saturation du gain au-dessus du seuil d'oscillation paramétrique [143]. Pour une microcavité, en régime d'excitation continue ou stationnaire, Whittaker [131] prévoit ainsi une saturation de l'amplitude de la polarisation $|P_p|$ du polariton de la pompe. La valeur de $|P_p|$ au seuil est donnée par :

$$V|P_p|^2 |X_s| |X_i| = \sqrt{\gamma_s \gamma_i}$$

où X_s et X_i sont les coefficients de Hopfield correspondant aux fractions excitoniques du polariton signal et du polariton complémentaire ; V le potentiel coulombien moyen ; enfin le terme de droite fait intervenir la moyenne géométrique des largeurs des polaritons signal et complémentaire. Physiquement, cette équation reflète l'égalité des pertes (taux donné par $\sqrt{\gamma_s \gamma_i}$) et du gain (terme de gauche) c'est-à-dire le taux de génération des polaritons signal et complémentaire.

D'autre part, nous avons vu que les interactions coulombiennes renormalisent l'énergie du polariton, provoquant un décalage de la raie du signal vers le bleu. Le modèle d'oscillateur paramétrique prévoit que la saturation de la population N_p provoque une saturation de ce décalage, au-dessus du seuil d'oscillation. Cela correspond bien à ce que nous observons en photoluminescence (cf. fig. 5.23).

Interprétation qualitative

Afin de confirmer que la chute du temps de cohérence est due à de la diffusion polariton-polariton stimulée par occupation de l'état final, nous utilisons les équations dérivées par Ciuti *et al.* [124], décrivant le régime d'amplification paramétrique lorsque le polariton de basse énergie est excité en résonance. Ces

équations régissent la dynamique de la polarisation pour les états des polaritons pompe, sonde et complémentaire, et ont été utiles pour interpréter les expériences de pompe-sonde de Savvidis *et al.* [27].

En notant k_p le vecteur d'onde des polaritons de pompe correspondant à l'angle d'excitation, les polarisations vérifient :

- pour les polaritons de pompe :

$$\frac{dP_{k_p}}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left[(\tilde{E}(k_p) + i\gamma)P_{k_p} + 2E_{\text{int}}P_{k_p}^*P_0P_{2k_p} + \mathcal{F}_{\text{pompe}}(t) \right]$$

- pour les polaritons de sonde :

$$\frac{dP_0}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left[(\tilde{E}(0) + i\gamma)P_0 + E_{\text{int}}P_{2k_p}^*P_{k_p}^2 + \mathcal{F}_{\text{sonde}}(t) \right]$$

- pour les polaritons du complémentaire :

$$\frac{dP_{2k_p}}{dt} = \frac{i}{\hbar} \left[(\tilde{E}(2k_p) + i\gamma)P_{2k_p} + 2E_{\text{int}}P_0^*P_{k_p}^2 \right]$$

Dans ces équations, c'est l'énergie du polariton de basse énergie renormalisée par les interactions polariton-polariton qui intervient, et qui est égale à $\tilde{E}(k_{//})$. Elle fait intervenir le potentiel effectif d'interaction polariton-polariton donné par :

$$V_{k,k',q} = \left[\frac{6e^2}{a_B^{2D}n_{\text{cav}}^2} X_{k+q}X_{k'} + \frac{\hbar\Omega}{n_{\text{sat}}(a_B^{2D})^2} (|C_{k+q}|X_{k'} + |C_{k'}|X_{k+q}) \right] X_{k'-q}X_k$$

Nous rappelons que a_B^{2D} est le rayon de Borh de l'exciton à deux dimensions, n_{sat} la densité de saturation donnée par l'équation 1.5, n_{cav} l'indice effectif de la cavité, $\hbar\Omega$ la valeur du dédoublement de Rabi, et X_k et C_k les coefficients de Hopfield correspondant au polariton de vecteur d'onde \vec{k} .

L'énergie renormalisée vaut alors

- pour le polariton de pompe : $\tilde{E}(k_p) = E(k_p) + 2V_{k_p, k_p, 0} |P_{k_p}|^2$

- pour le polariton de sonde : $\tilde{E}(0) = E(0) + 2V_{0, k_p, 0} |P_{k_p}|^2$

- pour le polariton de pompe : $\tilde{E}(2k_p) = E(2k_p) + 2V_{2k_p, k_p, 0} |P_{k_p}|^2$

Par souci de simplification, nous prenons, comme la réf. [124], des largeurs identiques pour tous les polaritons, égales à $2\gamma = 0,9 \text{ meV}$, valeur mesurée à basse puissance en réflectivité.

Enfin, E_{int} est l'énergie de couplage qui vaut $E_{\text{int}} = \frac{1}{2} (V_{k_p, k_p, k_p} + V_{k_p, k_p, -k_p})$ et $\mathcal{F}_{\text{pompe}}(t)$ est le champ incident de pompe constitué d'une impulsion gaussienne de largeur d'environ 230 fs. Afin de simuler une diffusion (même faible, par diffusion polariton-polariton) qui peuple les états de sonde en $\vec{k}_{//} = 0$ avant

que ne se produise toute amplification, un champ sonde $\mathcal{F}_{\text{sonde}}(t)$ est introduit, mais de valeur très faible (plusieurs ordres de grandeur plus faible que $\mathcal{F}_{\text{pompe}}(t)$).

Avec les paramètres de notre microcavité et à l'aide de la dispersion, il nous est possible de calculer le potentiel d'interaction $V_{k,k',q}$, et donc tous les termes qui interviennent. Nous avons résolu numériquement ces équations couplées pour une excitation femtoseconde à une incidence correspondant au vecteur de pompe k_p .

À très basse puissance, la polarisation de la pompe décroît exponentiellement, comme l'indique la figure 5.28, avec un temps de déclin égal à $T_2 = \hbar/\gamma$. La polarisation de la sonde est alors très faible. Lorsqu'on atteint le seuil d'amplification paramétrique, il y a une brusque amplification de la polarisation de la sonde (et aussi du complémentaire) et le temps de déclin de la polarisation de la pompe est diminué d'un facteur 2 environ (cf. fig. 5.29).

Le gain (rapport de la polarisation de la sonde en présence et en absence de la pompe) et la diminution du temps de déclin pour la pompe sont très sensibles au vecteur d'onde de pompe k_p , et sont maximum pour un angle d'environ 19° : nous retrouvons l'angle magique expérimental ($18,5^\circ$), qui correspond à l'angle magique pour une dispersion renormalisée du polariton.

Au-dessus du seuil, la polarisation de la pompe décline beaucoup plus vite au profit d'une amplification de la polarisation de la sonde, bien que γ soit supposé ici constant. Cela s'interprète en terme de déplétion de la pompe, traduisant un transfert cohérent des polaritons de pompe injectés vers la sonde et le complé-

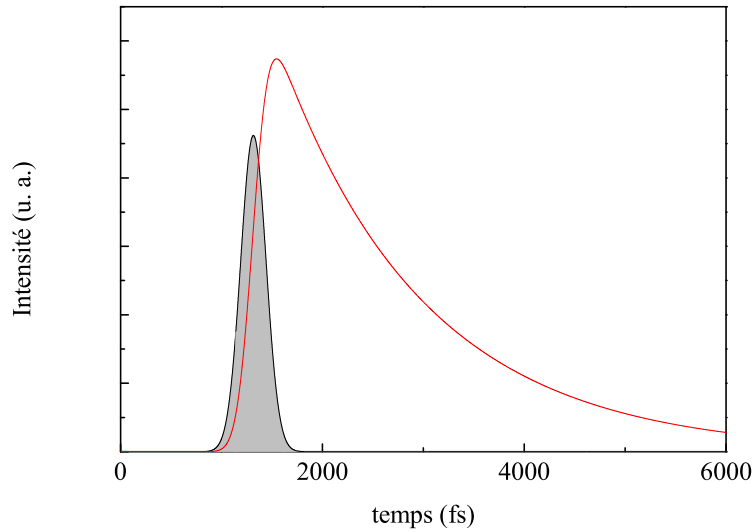


Fig. 5.28: Module de la polarisation de la pompe $|P_{k_p}|$ en fonction du temps, après l'excitation par une impulsion (en grisé) à basse puissance, sous le seuil d'amplification paramétrique.

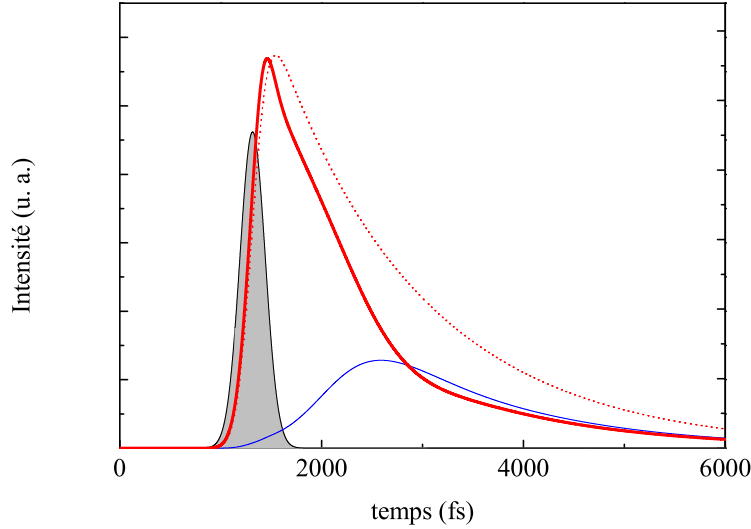


Fig. 5.29: Module de la polarisation de la pompe $|P_{k_p}|$ (en trait gras) et de la sonde $|P_0|$ (en trait fin) en fonction du temps, après l'excitation par une impulsion (en grisé) à basse puissance, au-dessus du seuil d'amplification paramétrique. La variation de la polarisation de la pompe $|P_{k_p}|$ en-dessous du seuil est rappelée en trait pointillé.

mentaire. Ce mécanisme explique bien pourquoi le temps de cohérence mesuré au-dessus du seuil chute brutalement d'un facteur 2 (entre 1 et 3 W/cm²).

Il reste à comprendre pourquoi le temps de cohérence reste constant sur une large plage de puissances d'excitation. Lorsque la puissance d'excitation augmente, les largeurs des polaritons 2γ ne restent pas constantes, mais comme nous l'avons vu, augmentent sous l'effet de l'élargissement collisionnel, et ce de manière plus prononcée pour le complémentaire que pour le signal, plus proche du réservoir excitonique. De plus, lorsque les largeurs sont plus importantes, le gain a tendance à se dégrader pour des puissances importantes [124]. La population de l'état final est alimentée par les porteurs issus de la pompe (par diffusion stimulée), mais est réduite par (i) l'émission en $k_{//} = 0$ et (ii) par la possibilité, lorsque cette population est suffisamment importante, de s'échapper vers le réservoir (élargissement collisionnel). Tous ces processus sont en compétition et doivent être pris en compte pour une complète compréhension de la dynamique du système à plus haute puissance [144].

5.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la dynamique du polariton de basse énergie en excitation résonante le long de la courbe de dispersion. Grâce à une expé-

rience de mélange à quatre ondes résolue en angle, nous avons mesuré le temps de cohérence pour un état $(E, \vec{k}_{//}(\theta))$ donné.

Dans un premier temps, nous avons mis en évidence un mécanisme d'élargissement collisionnel, présentant un seuil en fonction de l'angle d'excitation. Lorsque les polaritons sont photocréés en centre de zone, la diffusion polariton-polariton est limitée à une région de faible densité d'état. L'élargissement de la raie est alors faible pour les petits angles, puis il est activé à partir d'un angle seuil, lorsque les polaritons peuvent s'échapper du puits de potentiel et accéder au réservoir excitonique. Ce résultat est similaire à l'élargissement collisionnel en incidence normale observé par Baars [128] dans les III-V, qui présente un seuil en densité de porteurs. Ces deux mécanismes sont reliés aux mêmes phénomènes physiques, et s'expliquent dans le même formalisme.

Nous avons ensuite étudié la dynamique de la pompe dans le régime d'oscillation paramétrique, sous excitation à l'angle magique. C'est une étude nouvelle, car la plupart des travaux se sont plutôt intéressés à l'émission du signal ou du complémentaire. Nous mesurons une chute brutale du temps de cohérence à cet angle pour des densités de porteurs supérieures au seuil de stimulation. La dynamique cohérente du polariton de pompe dans ce régime est dominée par le phénomène de déplétion de la pompe.

Conclusion

L'interaction matière-rayonnement est fortement modifiée dans les microcavités de semiconducteurs en régime de couplage fort. Les polaritons de microcavité, qui sont les états propres du système, présentent une dispersion très différente de celle des excitons nus. Au cours de cette thèse, nous avons étudié la dynamique des polaritons dans le régime cohérent à l'aide d'expériences de mélange à quatre ondes.

Nous nous sommes intéressés dans un premier temps à la nature des non-linéarités qui gouvernent la dynamique des polaritons. Lorsque les deux modes de polaritons sont excités, des oscillations de Rabi apparaissent dans le signal de mélange à quatre ondes. Ces oscillations sont la manifestation du couplage fort dans le domaine temporel. Grâce à la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch, nous avons montré que le contraste de ces oscillations était régi par le poids relatif du remplissage de l'espace des phases (blocage de Pauli) et des interactions coulombiennes. L'analyse du contraste des courbes expérimentales a alors permis de déterminer l'importance relative de ces deux contributions lorsque la densité de porteurs augmente. Pour le polariton de basse énergie, les interactions coulombiennes dominent à basse densité de porteurs, puis il existe un seuil de densité de porteurs au-delà duquel le blocage de Pauli devient prépondérant. Ce seuil se situe un ordre de grandeur en-dessous de celui auquel s'effectue la transition vers le couplage faible, et a une faible dépendance avec le désaccord. En ce qui concerne le polariton de haute énergie, nous trouvons que la dynamique est toujours dominée par le blocage de Pauli. Nous mettons ainsi en évidence un comportement très différent pour les deux polaritons, sans doute lié à la très grande différence de dispersion et de couplage avec les états du réservoir excitonique. De plus, nous montrons que dans des régimes où des effets de stimulation ont été observés, les interactions coulombiennes ne sont pas les seules sources de non-linéarités à prendre en compte, comme c'est souvent le cas.

Cependant, le modèle sur lequel nous fondons notre analyse ne permet pas de connaître les raisons de cette différence de comportement, ni l'origine de l'évolution des non-linéarités avec la densité de porteurs (par exemple comment intervient l'écrantage des interactions coulombiennes?). Une analyse plus élaborée et plus difficile, fondée sur un modèle microscopique traitant plus complètement les

interactions à N corps serait utile à la compréhension de nos observations.

La deuxième partie de cette thèse est consacrée à l'influence de la dispersion du polariton de basse énergie sur la dynamique cohérente grâce à une expérience de mélange à quatre ondes résolu en angle. Lorsque l'angle d'incidence augmente, le temps de cohérence diminue fortement à partir d'un angle seuil. Ces caractéristiques sont interprétées dans le cadre d'un modèle d'élargissement collisionnel : la diffusion polariton-polariton, responsable de l'élargissement spectral du polariton, est activée lorsque les états du réservoir excitonique (à grands angles) sont accessibles pour les états finals. Cette dépendance avec l'angle d'incidence, nouvellement étudiée, est le pendant de l'élargissement collisionnel avec la densité d'excitation pour un angle donné, déjà étudiée en incidence normale dans des microcavités III-V [51, 128], et étudiée ici pour nos matériaux à différents angles. La comparaison théorie-expérience est qualitativement excellente dans les deux situations.

Les caractéristiques de l'élargissement collisionnel (comportement avec seuil) sont essentiellement dues à la forme particulière de la dispersion, et à une diffusion répulsive entre polaritons. Le modèle utilisé ici comporte un certain nombre d'approximations qui peuvent expliquer qu'en valeur absolue, l'élargissement calculé n'est pas parfait. Notamment, il ne tient pas compte d'un éventuel écrantage des interactions coulombiennes, qui, comme nous l'avons discuté précédemment, peut être important. Il serait intéressant de développer, ici aussi, une théorie plus complète pour décrire les interactions à N corps, d'autant plus que ce genre d'approximations est utilisé pour rendre compte aussi d'expériences de stimulation et d'oscillation paramétrique.

Enfin, sous excitation à « l'angle magique », et en régime de stimulation, nous étudions pour la première fois la dynamique des polaritons de pompe dans le phénomène d'oscillation paramétrique. Nous mettons en évidence une forte perte de cohérence, qui n'existe pas sous le seuil de stimulation, et qui ne peut être expliquée dans le cadre théorique d'élargissement par diffusion polariton-polariton. De plus, le temps de cohérence à l'angle magique reste très bas et constant lorsque la puissance incidente augmente, témoignant de la déplétion de la pompe.

La cohérence de l'émission dans les phénomènes de stimulation n'est pas encore bien connue, et l'obtention d'un grand nombre de polaritons « condensés » en centre de zone est toujours incertaine. Il serait intéressant de mesurer la cohérence de ces états (en centre de zone), par exemple par des mesures de mélange à quatre ondes, sous et au-dessus du seuil de stimulation.

Plus largement, les phénomènes de relaxation stimulée par occupation de l'état final intéressent beaucoup la recherche en vue d'applications éventuelles (laser sans seuil). Afin d'augmenter l'efficacité de ce phénomène, Kavokin *et al.* proposent d'utiliser des microcavités faiblement dopées, où la relaxation vers le centre de zone serait beaucoup plus favorisée par les interactions polaritons-électrons

[37]. Une autre voie en cours de développement concerne la réalisation de micro-cavités à base de nouveaux matériaux, comme le GaN, qui présente de grandes énergies de bande interdite et dans lesquelles le couplage fort se maintiendrait à température ambiante.

Annexe A

Mélange à quatre ondes : cas des systèmes à deux niveaux

A.1 Résolution formelle des équations de Bloch optiques

Le développement des équations de Bloch optiques à l'ordre 3 aboutit au système d'équations suivant (cf. § 2.2.2) :

$$\frac{dp^{(1)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega\right) p^{(1)} - \frac{1}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} = 0 \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{dn^{(2)}}{dt} + \frac{n^{(2)}}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (p^{(1)} \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{E}^* - p^{(1)*} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (\text{A.2})$$

$$\frac{dp^{(3)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega\right) p^{(3)} + \frac{2}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{E} n^{(2)} = 0 \quad (\text{A.3})$$

où le champ \vec{E} a l'expression suivante :

$$\vec{E} = \vec{E}_1 + \vec{E}_2 = \mathcal{E}_1 \mathcal{A}(\vec{r}, t) e^{-i(\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{\epsilon}_1 + \mathcal{E}_2 \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{\epsilon}_2$$

Sous excitation d'un champ de pulsation ω , on cherche $p^{(1)}$ sous la forme d'un produit d'une modulation rapide $e^{i\omega t}$ et d'une enveloppe lentement variable $\tilde{p}^{(1)}(t)$:

$$p^{(1)}(t) = \tilde{p}^{(1)}(t) e^{i\omega t}$$

L'équation 2.5 devient :

$$\frac{d\tilde{p}^{(1)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i(\Omega - \omega)\right) \tilde{p}^{(1)} = f(t)$$

où l'on a posé

$$f(t) = \frac{1}{i\hbar} (\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_1 \mathcal{E}_1 \mathcal{A}(\vec{r}, t) e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + \vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2 \mathcal{E}_2 \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})})$$

La solution est :

$$\begin{aligned}
p^{(1)}(t) &= \int_{-\infty}^t e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t-t')} f(t') dt' e^{i\omega t} \\
&= \mathcal{E}_1 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_1}{i\hbar} \int_{-\infty}^t e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t-t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t') dt' e^{i\omega t} e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} \\
&+ \mathcal{E}_2 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2}{i\hbar} \int_{-\infty}^t e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t-t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t' - \Delta t) dt' e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \\
&= \mathcal{P}_1(t) e^{i\omega t} e^{-i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + \mathcal{P}_2(t) e^{i\omega t} e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \tag{A.4}
\end{aligned}$$

$p^{(1)}(t)$ est la somme de la polarisation créée par la première impulsion et de celle créée par la seconde.

Avec cette expression de $p^{(1)}(t)$, l'équation A.2 fait apparaître des termes de fréquence spatiale $\vec{0}$, $\vec{k}_1 - \vec{k}_2$, $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$. La population d'ordre 2, $n^{(2)}$, se décompose donc en trois termes :

$$n^{(2)} = n_0^{(2)} + n_+^{(2)} e^{-i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} + n_-^{(2)} e^{-i(\vec{k}_1 - \vec{k}_2) \cdot \vec{r}}$$

La population créée par les deux impulsions est ainsi modulée dans l'espace. Cela correspond à la création d'un réseau cohérent de population évoqué au § 2.1. Nous cherchons le signal diffracté par ce réseau dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$. Il est seulement dû à $n_+^{(2)}$, qui vérifie alors :

$$\frac{dn_+^{(2)}}{dt} + \frac{n_+^{(2)}}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (\mathcal{P}_2(t) \mathcal{E}_1 \mathcal{A}(\vec{r}, t) \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 - \mathcal{P}_1^*(t) \mathcal{E}_2 \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) \vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2) = 0$$

On trouve :

$$n_+^{(2)}(t) = \int_{-\infty}^t g(t'') e^{-(t-t'')/T_1} dt'' \tag{A.5}$$

avec

$$\begin{aligned}
g(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 \vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2 \\
&\times \left[\mathcal{A}(\vec{r}, t) \int_{-\infty}^t e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t-t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t' - \Delta t) dt' \right. \\
&\quad \left. + \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) \int_{-\infty}^t e^{-(1/T_2 + i(\Omega - \omega))(t-t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t') dt' \right]
\end{aligned}$$

L'équation A.3 montre que la cohérence d'ordre 3, $p^{(3)}$, a alors quatre composantes ; en effet, le produit du champ par $n^{(2)}$ donne des composantes selon les directions \vec{k}_1 , \vec{k}_2 , $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, $2\vec{k}_1 - \vec{k}_2$. Nous ne nous intéresserons qu'au terme de la cohérence en $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, que l'on notera $p_{221*}^{(3)}$. Ainsi seul le produit de la composante $n_+^{(2)}$ de la population avec l'impulsion 2 contribue à $p_{221*}^{(3)}$. L'équation A.3 se réduit pour $p_{221*}^{(3)}$ à :

$$\begin{aligned} \frac{dp_{221*}^{(3)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega\right) p_{221*}^{(3)} \\ + \frac{2}{i\hbar} \vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2 \mathcal{E}_2 \mathcal{A}(\vec{r}, t - \Delta t) e^{-i(\vec{k}_2 \cdot \vec{r} - \omega t)} n_+^{(2)} e^{-i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} = 0 \end{aligned}$$

et se résoud comme pour l'équation du premier ordre. On obtient finalement :

$$\begin{aligned} p_{221*}^{(3)}(t) &= \frac{2i}{\hbar^3} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 (\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2)^2 e^{-(1/T_2 - i\Omega)t} e^{-i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} \\ &\times \int_{-\infty}^t dt''' \int_{-\infty}^{t'''} dt'' \int_{-\infty}^{t''} dt' e^{(1/T_2 - i(\Omega - \omega))t'''} \mathcal{A}(\vec{r}, t''' - \Delta t) e^{-(t'' - t')/T_1} \\ &\times [\mathcal{A}(\vec{r}, t'') e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t'' - t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t' - \Delta t) \\ &+ \mathcal{A}(\vec{r}, t' - \Delta t) e^{-(1/T_2 + i(\Omega - \omega))(t'' - t')} \mathcal{A}(\vec{r}, t')] \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

A.2 Résolution analytique dans le cas d'impulsions de Dirac

Dans le cas où l'évolution des cohérences est long, ($T_2 \gg$ largeur des impulsions), les impulsions laser peuvent être assimilées à des fonctions de Dirac. Ce cas simplifié présente l'avantage d'être soluble analytiquement. L'enveloppe des impulsions laser s'écrit alors :

$$\mathcal{A}(\vec{r}, t) = \delta(\vec{r}, t)$$

La cohérence à l'ordre 1 devient, d'après l'équation A.4 :

$$\begin{aligned} p^{(1)}(t) &= \mathcal{E}_1 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_1}{i\hbar} e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))t} e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \theta(t) \\ &+ \mathcal{E}_2 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2}{i\hbar} e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))(t - \Delta t)} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \theta(t - \Delta t) \end{aligned}$$

avec θ la fonction de Heaviside. A la résonance, $\omega = \Omega$ et on a :

$$\begin{aligned} p^{(1)}(t) &= \mathcal{E}_1 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_1}{i\hbar} e^{-t/T_2} e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \theta(t) \\ &+ \mathcal{E}_2 \frac{\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2}{i\hbar} e^{-(t - \Delta t)/T_2} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \theta(t - \Delta t) \end{aligned}$$

La polarisation à l'ordre 1 (reliée à la cohérence par la relation 2.1), est ainsi constituée de la polarisation créée par la première impulsion en $t = 0$ et de celle créée par la seconde en $t = \Delta t$ (cf. schéma a) de la fig.A.1). Chacune oscille à la fréquence ω et voit son amplitude décroître avec la constante de temps T_2 .

L'équation A.5 donnant l'évolution de la composante de la population $n_+^{(2)}$ devient :

$$\begin{aligned} n_+^{(2)}(t) &= \frac{1}{\hbar^2} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 \vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2 \\ &[\theta(-\Delta t) \theta(t) e^{(1/T_2 + i(\Omega - \omega))\Delta t} e^{-t/T_1} \\ &+ \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) e^{-(1/T_2 - i(\Omega - \omega))\Delta t} e^{-(t - \Delta t)/T_1}] \end{aligned}$$

L'expression de $n_+^{(2)}$ contient deux termes. Lorsque Δt est positif, c'est-à-dire lorsque l'impulsion 2 arrive à $t = \Delta t$, après l'impulsion 1, le premier terme est nul et à la résonance, on a alors :

$$n_+^{(2)}(t) \propto \theta(t - \Delta t) e^{-\Delta t/T_2} e^{-(t - \Delta t)/T_1}$$

Lorsque Δt est négatif, l'impulsion 1 arrivant à $t = 0$, après l'impulsion 2, c'est le second terme qui est nul et à la résonance,

$$n_+^{(2)}(t) \propto \theta(t) e^{\Delta t/T_2} e^{-t/T_1}$$

Finalement, le réseau de population $n_+^{(2)}$ n'est créé qu'après l'arrivée de la dernière impulsion, et décroît avec la constante de temps T_1 (cf. schéma b) de la fig.A.1). Avec le retard, son intensité décroît exponentiellement avec la constante T_2 .

Enfin, la résolution de l'équation A.6 donne :

$$\begin{aligned} p_{221*}^{(3)}(t) &= \frac{2i}{\hbar^3} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 (\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2)^2 \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) \\ &\times e^{-(1/T_2 - i\Omega)t} e^{-i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} e^{-2i(\Omega - \omega)\Delta t} \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

A la résonance, la cohérence est :

$$p_{221*}^{(3)}(t) \propto e^{-t/T_2} e^{i\Omega t} \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t)$$

D'après l'équation 2.1, la polarisation macroscopique à l'ordre 3 est de la forme :

$$P_{221*}^{(3)}(t) \propto \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) e^{-t/T_2} h(t)$$

où $h(t)$ est une fonction qui oscille très rapidement et dont la phase est $\Omega t - (2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}$. Cette polarisation macroscopique est un terme source dans les équations de Maxwell. L'intensité du signal diffracté dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est proportionnelle au carré du module de $P_{221*}^{(3)}$. Le signal de mélange à quatre ondes résolu en temps (Tr-FWM) existe uniquement pour des retards positifs et dans

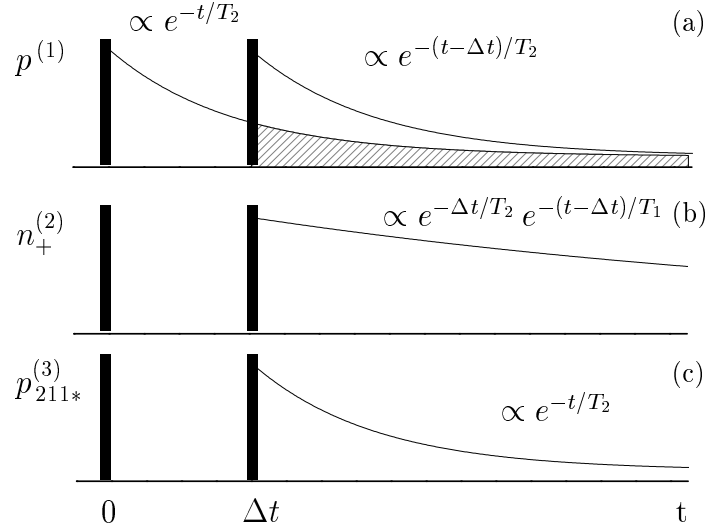


Fig. A.1: Allure des solutions dans le cas d'impulsions ultra-courtes, la première arrivant en $t = 0$, la seconde en $t = \Delta t$ ($\Delta t > 0$). La partie oscillante n'est pas représentée. a) polarisation à l'ordre 1. b) population responsable du signal diffracté dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, créée par l'interaction des deux polarisations d'ordre 1, dues à chaque impulsion, cf. zone hachurée sur la fig a). c) polarisation d'ordre 3 dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, créée par la diffraction sur le réseau de population, de photons de la deuxième impulsion. Il faut noter que ces photons ne peuvent être diffractés que pour des délais positifs, d'où $p_{221*}^{(3)}(t)=0$ pour $\Delta t < 0$.

ce cas, il n'apparaît que pour $t > \Delta t$. Son enveloppe décroît exponentiellement avec la constante de temps $T_2/2$:

$$I_{221*}^{(3)}(t) \propto |P_{221*}^{(3)}(t)|^2 \propto \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) e^{-2t/T_2} h^2(t) \quad (\text{A.8})$$

L'allure des solutions dans le cas limite d'impulsions ultra-courtes est résumée à la figure A.1, où l'on suppose que le temps de vie T_1 est plus grand que le temps de cohérence T_2 .

Le signal de mélange à quatre ondes intégré en temps (Ti-FWM) (cf. § 2.1) a pour expression en fonction du retard :

$$I_s(\Delta t) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{221*}^{(3)}(t) dt = \int_{\Delta t}^{+\infty} |P_{221*}^{(3)}(t)|^2 dt$$

D'après A.8, on obtient :

$$I_s(\Delta t) \propto \theta(\Delta t) e^{-2\Delta t/T_2} \quad (\text{A.9})$$

Avec le retard, le signal décroît donc avec la constante de temps $T_2/2$. On notera que dans le cas de systèmes à deux niveaux indépendants, il n'existe que pour des retards positifs.

Annexe B

Équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs

Dans cette annexe, nous rappelons comment il est possible d'obtenir les équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs [49], qui permettent de décrire la dynamique cohérente d'un ensemble d'électrons et de trous en interaction coulombienne, et qui généralisent les équations de Bloch optiques. Dans une deuxième partie, nous détaillons la résolution de ces équations dans le cadre de l'approximation du champ local, qui est exposée au § 2.3.1.

B.1 Hamiltonien

Nous n'allons considérer qu'une bande de valence d'énergie $E_{v,\mathbf{k}}$ et une bande de conduction d'énergie $E_{c,\mathbf{k}}$. On se place ici dans le formalisme de seconde quantification, où il est simple d'exprimer les interactions coulombiennes entre les électrons de chacune des deux bandes. Avec $a_{v,\mathbf{k}}^\dagger$ (respectivement $a_{c,\mathbf{k}}^\dagger$) l'opérateur création d'un électron de vecteur d'onde \mathbf{k} dans la bande de valence (respectivement dans la bande de conduction), l'hamiltonien électronique s'écrit :

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \sum_{\mathbf{k}} (E_{v,\mathbf{k}} a_{v,\mathbf{k}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}} + E_{c,\mathbf{k}} a_{c,\mathbf{k}}^\dagger a_{c,\mathbf{k}})$$

L'hamiltonien qui décrit les interactions coulombiennes entre électrons de la même bande et entre électrons de bandes différentes est :

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}}_c = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q} \neq 0} V_{\mathbf{q}} & (a_{c,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger a_{c,\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger a_{c,\mathbf{k}'} a_{c,\mathbf{k}} + a_{v,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}'} a_{v,\mathbf{k}} \\ & + 2 a_{c,\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}'} a_{c,\mathbf{k}}) \end{aligned}$$

On omet les interactions qui ne conservent pas le nombre d'électrons à l'intérieur d'une bande, c'est-à-dire qui permettraient à un électron de changer de bande,

car c'est un processus énergétiquement peu favorable. Enfin, le couplage avec la lumière est décrit par l'hamiltonien :

$$\hat{\mathcal{H}}_I = - \sum_{\mathbf{k}} (a_{c,\mathbf{k}}^\dagger a_{v,\mathbf{k}} \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E} + c.c.)$$

où \vec{d}_{cv} est l'élément de matrice interbande de l'opérateur moment dipolaire.

En se plaçant dans une représentation trou-électron, on définit un opérateur création de trous, sachant que le trou a un vecteur d'onde opposé à celui de l'électron de valence que l'on annihile :

$$\beta_{-\mathbf{k}}^\dagger = a_{v,\mathbf{k}}$$

On notera aussi l'opérateur création d'électron de conduction de manière symétrique :

$$\alpha_{\mathbf{k}}^\dagger = a_{c,\mathbf{k}}$$

L'hamiltonien $\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_c + \hat{\mathcal{H}}_I$ devient alors, après permutations d'opérateurs :

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{H}} &= \sum_{\mathbf{k}} (E_{e,\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}} + E_{h,\mathbf{k}} \beta_{-\mathbf{k}}^\dagger \beta_{-\mathbf{k}}) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}', \mathbf{q} \neq 0} V_q (\alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'} \alpha_{\mathbf{k}} + \beta_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'} \beta_{\mathbf{k}} - 2 \alpha_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'} \alpha_{\mathbf{k}}) \\ &- \sum_{\mathbf{k}} (\alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}} \vec{d}_{cv} \cdot \vec{E} + c.c.) \end{aligned}$$

en supprimant les termes constants et en ayant posé :

$$\begin{aligned} E_{e,\mathbf{k}} &= E_{c,\mathbf{k}} \\ E_{h,\mathbf{k}} &= -E_{v,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q} \neq 0} V_q \end{aligned}$$

Le gap devient donc $E_{c,\mathbf{k}} - E_{v,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q} \neq 0} V_q$ et inclut les interactions coulombiennes de toute la bande de valence (*i.e.* $\sum_{\mathbf{q} \neq 0} V_q n_{v,|\mathbf{k}-\mathbf{q}|}$ avec la population d'électrons dans la bande de valence $n_{v,|\mathbf{k}-\mathbf{q}|}$ égale à 1).

B.2 Établissement des équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs

Comme dans le cas précédent, nous voulons obtenir les équations d'évolution pour les éléments de la matrice densité réduite (c'est-à-dire pour un système à deux niveaux correspondant au vecteur d'onde \mathbf{k}), donc pour :

$\langle \alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}} \rangle = n_{e,\mathbf{k}}(t)$, la population d'électrons de la bande de conduction en \mathbf{k} ,
 $\langle \beta_{\mathbf{k}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}} \rangle = n_{h,\mathbf{k}}(t)$, la population de trous de la bande de valence en \mathbf{k} ,
 $\langle \beta_{-\mathbf{k}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle = p_{\mathbf{k}}(t)$, la cohérence.

Pour cela, on écrit pour chacun de ces opérateurs l'équation d'évolution dans la représentation d'Heisenberg, qui s'écrit pour un opérateur A : $i\hbar \frac{dA}{dt} = [A, \hat{\mathcal{H}}]$. Les propriétés de commutation des opérateurs création et annihilation permettent de simplifier les équations et d'obtenir des produits de deux ou quatre opérateurs au lieu de quatre ou six. C'est le terme coulombien de l'hamiltonien qui introduit les produits de quatre opérateurs. Par exemple, l'équation d'évolution pour la cohérence prend ainsi la forme suivante :

$$\begin{aligned}
 -i\hbar \frac{dp_{\mathbf{k}}}{dt} &= (E_{e,\mathbf{k}} + E_{h,\mathbf{k}})p_{\mathbf{k}} + (n_{e,\mathbf{k}} + n_{h,\mathbf{k}} - 1) \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} \\
 &+ \sum_{\mathbf{k}', \mathbf{q} \neq 0} V_{\mathbf{q}} [\langle \alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'}^\dagger \beta_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}} \rangle + \langle \alpha_{\mathbf{k}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger \beta_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'+\mathbf{q}} \rangle \\
 &+ \langle \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'}^\dagger \alpha_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger \rangle + \langle \alpha_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'-\mathbf{q}}^\dagger \beta_{\mathbf{k}'}^\dagger \rangle]
 \end{aligned}$$

$n_{e,\mathbf{k}}$ et $n_{h,\mathbf{k}}$ vérifient des équations semblables.

Pour résoudre ces équations, il faudrait écrire l'évolution de chaque terme à quatre opérateurs, ce qui introduirait des termes à six opérateurs ; l'équation d'évolution pour ces derniers termes contiendrait des produits de huit opérateurs et ainsi de suite. On recourt ici à une approximation afin de tronquer ce système infini d'équations. À l'ordre le plus bas, on effectue une approximation de la phase aléatoire (en anglais « random phase approximation », qui est une approximation de champ moyen), consistant à scinder les moyennes des produits à quatre opérateurs par des produits de moyennes de deux opérateurs, de façon à faire apparaître les densités et la cohérence. A ce niveau, les corrélations entre quatre particules sont négligées. En appliquant cette approximation ([49, 145, 48]) et en ajoutant les termes phénoménologiques de relaxation (cf. § 2.2.1), on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned}
 \frac{dp_{\mathbf{k}}}{dt} &= -\frac{1}{i\hbar} \left[E_{e,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} n_{e,\mathbf{q}} + E_{h,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} n_{h,\mathbf{q}} \right] p_{\mathbf{k}} \\
 &+ \frac{1}{i\hbar} (1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}}) (\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}}) - \frac{p_{\mathbf{k}}}{T_2} \\
 \frac{dn_{e,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} \left[(\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}}) p_{\mathbf{k}}^* \right] - \frac{n_{e,\mathbf{k}}}{T_{1e}} \\
 \frac{dn_{h,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} \left[(\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|\mathbf{k}-\mathbf{q}|} p_{\mathbf{q}}) p_{\mathbf{k}}^* \right] - \frac{n_{h,\mathbf{k}}}{T_{1h}}
 \end{aligned}$$

On peut se ramener à des équations formellement identiques aux équations de Bloch optiques 2.3 en posant :

$$\mathcal{E}_{i,\mathbf{k}} = E_{i,\mathbf{k}} + \sum_{\mathbf{q}} V_{|k-q|} n_{i,\mathbf{q}} \quad i = e, h$$

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|k-q|} p_{\mathbf{q}}$$

ce qui montre que les énergies et le couplage avec le champ sont renormalisés par l'effet des interactions coulombiennes. L'introduction des interactions coulombiennes conduit ainsi aux équations de Bloch optiques pour les semiconducteurs :

$$\begin{aligned} \frac{dp_{\mathbf{k}}}{dt} &= -\frac{1}{i\hbar} (\mathcal{E}_{e,\mathbf{k}} + \mathcal{E}_{h,\mathbf{k}}) p_{\mathbf{k}} + \frac{1}{i\hbar} (1 - n_{e,\mathbf{k}} - n_{h,\mathbf{k}}) \Delta_{\mathbf{k}} - \frac{p_{\mathbf{k}}}{T_2} \\ \frac{dn_{e,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} [\Delta_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{e,\mathbf{k}}}{T_{1e}} \\ \frac{dn_{h,\mathbf{k}}}{dt} &= \frac{2}{\hbar} \text{Im} [\Delta_{\mathbf{k}} p_{\mathbf{k}}^*] - \frac{n_{h,\mathbf{k}}}{T_{1h}} \end{aligned}$$

B.3 Modèle du champ local

Ce modèle permet une résolution analytique dans le cas d'impulsions de Dirac. Il consiste à supposer que

$$\sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{k}} V_{|k-q|} p_{\mathbf{q}} = V p_{\mathbf{k}},$$

avec $V \in \mathbb{R}$ un potentiel coulombien moyen.

En supposant $\mathcal{E}_{e,\mathbf{k}}$ et $\mathcal{E}_{h,\mathbf{k}}$ constantes, cette hypothèse aboutit à un découplage des équations de Bloch pour les semiconducteurs, et à se ramener à un ensemble de systèmes à deux niveaux indépendants, auquel on adjoint des corrections pour rendre compte des interactions. En effet, les éléments non diagonaux de l'hamiltonien deviennent :

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + V p_{\mathbf{k}} = \vec{d}_{vc} \cdot (\vec{E} + \vec{E}_p)$$

On tient compte du champ dû aux autres paires électron-trou, \vec{E}_p , qui est proportionnel à la polarisation. On prend donc en compte le champ local $\vec{E} + \vec{E}_p$ ressenti par l'exciton en \mathbf{k} .

Nous allons supposer que les temps de vie pour les trous et les électrons sont les mêmes, de sorte que $n_{e,\mathbf{k}} = n_{h,\mathbf{k}} = n_{\mathbf{k}}$. En suivant la même procédure de

développement en ordre du champ (cf. § 2.2.2), on obtient :

$$\frac{dp_{\mathbf{k}}^{(1)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega_{\mathbf{k}}\right) p_{\mathbf{k}}^{(1)} - \frac{1}{i\hbar} \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} = 0 \quad (\text{B.1})$$

$$\frac{dn_{\mathbf{k}}^{(2)}}{dt} + \frac{n_{\mathbf{k}}^{(2)}}{T_1} + \frac{1}{i\hbar} (p_{\mathbf{k}}^{(1)} \vec{d}_{vc}^* \cdot \vec{E}^* - p_{\mathbf{k}}^{(1)*} \vec{d}_{vc} \cdot \vec{E}) = 0 \quad (\text{B.2})$$

$$\frac{dp_{\mathbf{k}}^{(3)}}{dt} + \left(\frac{1}{T_2} - i\Omega_{\mathbf{k}}\right) p_{\mathbf{k}}^{(3)} + \frac{2}{i\hbar} (\vec{d}_{vc} \cdot \vec{E} + V p_{\mathbf{k}}^{(1)}) n_{\mathbf{k}}^{(2)} = 0 \quad (\text{B.3})$$

Pour le premier et le second ordre, les équations B.1 et B.2 sont les mêmes que dans le cas de systèmes isolés (équations A.1 et A.2), et se résolvent itérativement de la même manière (cf. annexe A). L'équation du troisième ordre comporte un terme supplémentaire, dû aux interactions coulombiennes, qui va engendrer aussi des non-linéarités : $V p_{\mathbf{k}}^{(1)} n_{\mathbf{k}}^{(2)}$. Si le temps de vie est long, une résolution identique à celle effectuée à l'annexe A montre que la polarisation à l'ordre 3 dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ est :

$$\begin{aligned} p_{221*}^{(3)}(t) &= \frac{2i}{\hbar^3} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 \vec{d}_{ab}^* \cdot \vec{\epsilon}_1 (\vec{d}_{ab} \cdot \vec{\epsilon}_2)^2 \theta(\Delta t) \theta(t - \Delta t) \\ &\times \left[e^{-(1/T_2 - i\Omega)t} e^{-i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} e^{-2i(\Omega - \omega)\Delta t} \left(1 + \frac{2iV(t - \Delta t)}{\hbar} \right) \right. \\ &\quad \left. + \frac{2iVt}{\hbar} e^{(-1/T_2 + i(\omega - \Omega))(t - 2\Delta t)} \theta(-\Delta t) \theta(t) \right] \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

La polarisation à l'ordre 3 contient deux nouvelles contributions dues aux interactions coulombiennes :

$$p_{\mathbf{k},221*}^{(3)} = p_{\mathbf{k},0}^{(3)} + p_{\mathbf{k},V1}^{(3)} + p_{\mathbf{k},V2}^{(3)}$$

$p_{\mathbf{k},0}^{(3)}$ est la polarisation en l'absence d'interaction (équation A.7). $p_{\mathbf{k},V1}^{(3)}$ et $p_{\mathbf{k},V2}^{(3)}$ sont proportionnels à V et le premier n'existe que pour $\Delta t > 0$, tandis que le second n'est non nul que pour $\Delta t < 0$. Le signal de mélange à quatre ondes n'apparaît que pour $t > \Delta t$, mais à la différence du cas des systèmes sans interaction, atteint sa valeur maximale au bout d'un temps de l'ordre de T_2 avant de décroître exponentiellement.

On montre que l'intensité de signal de mélange à quatre ondes intégré en temps est la somme des intensités correspondant à chacun de ces termes. Elle est de la forme :

$$I_s^{(3)}(\Delta t) = \int dt |P_{221*}^{(3)}(t)|^2 \propto \theta(\Delta t) e^{-2\Delta t/T_2} (1 + 2(VT_2/\hbar)^2) + \theta(-\Delta t) e^{4\Delta t/T_2}$$

Le signal croît exponentiellement avec la constante de temps $T_2/4$ (intensité due à $p_{\mathbf{k},V2}^{(3)}$), et décroît exponentiellement avec la constante de temps $T_2/2$ (intensité due à $p_{\mathbf{k},0}^{(3)}$ et $p_{\mathbf{k},V1}^{(3)}$).

B.4 Temps de montée et de déclin

Nous montrons ici qualitativement pourquoi les constantes de temps qui interviennent dans le signal de mélange à quatre ondes sont $T_2/2$ et $T_2/4$. En résumé (cf. fig. B.1), à $\Delta t > 0$, le champ électrique et le maximum de la polarisation de la deuxième impulsion sont diffractés par le réseau de population, dont l'intensité est proportionnelle à $e^{-\Delta t/T_2}$. On sonde alors, lorsque Δt varie, la décroissance de l'intensité du réseau. À $\Delta t < 0$, seule la polarisation due à la seconde impulsion est diffractée, et une partie seulement ; on sonde en plus la décroissance de cette polarisation. Il intervient alors deux décroissances en $e^{\Delta t/T_2}$, ce qui explique un temps de montée deux fois plus rapide.

Nous allons voir que l'intensité du signal de mélange à quatre ondes est approximativement liée au carré du maximum de la polarisation à l'ordre 3. Celle-ci se construit sur une durée T_2 , avant de décroître exponentiellement. En négligeant ce temps de montée, $|p_{\mathbf{k},221*}^{(3)}|$ peut s'écrire :

$$|p_{\mathbf{k},221*}^{(3)}| \approx p_{\max}^{(3)} e^{-(t-\Delta t)/T_2} \theta(\Delta t)$$

Alors

$$I_{221*}^{(3)}(\Delta t) = \int_{\Delta t}^{\infty} |p_{\mathbf{k},221*}^{(3)}(t)|^2 dt \propto (p_{\max}^{(3)})^2$$

D'autre part, la valeur de $|p_{\mathbf{k},221*}^{(3)}(t)|$ est liée à celle du terme source responsable des non-linéarités. En particulier, elle est maximale lorsque le terme source des non-linéarités est maximum. $p_{\max}^{(3)}$ va donc varier comme le maximum du terme source avec le retard.

- Interactions coulombiennes

Le terme source dû aux les interactions coulombiennes est $V p_{\mathbf{k}}^{(1)} n_{\mathbf{k}}^{(2)}$. Dans la direction $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$, c'est seulement $p_2^{(1)} n_+^{(2)}$ qui est responsable du signal, où $p_2^{(1)}$ est la polarisation à l'ordre 1 créée par la première impulsion, et $n_+^{(2)}$ le réseau de population défini dans l'annexe A. Les expressions de ces quantités sont les mêmes ici que dans l'annexe A et valent :

$$\begin{aligned} p_2^{(1)}(t) &\propto p_{\max}^{(1)} e^{-(t-\Delta t)/T_2} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \theta(t - \Delta t) \\ n_+^{(2)}(t) &\propto \theta(t - \Delta t) e^{-\Delta t/T_2} e^{-(t-\Delta t)/T_1} \quad (\text{pour } \Delta t > 0) \\ n_+^{(2)}(t) &\propto \theta(t) e^{\Delta t/T_2} e^{-t/T_1} \quad ((\text{pour } \Delta t < 0)) \end{aligned}$$

L'intensité maximale du réseau de population $n_+^{(2)}(t)$ vaut $n_{\max} = e^{-|\Delta t|/T_2}, \forall \Delta t$. La figure B.1 montre la variation de ces variables.

Pour $\Delta t > 0$ l'amplitude du terme source $p_2^{(1)} n_+^{(2)}$ est maximale en $t = \Delta t$ (cf. fig. B.1) et est proportionnelle à $e^{-\Delta t/T_2}$. Interviennent ici la valeur du maximum de $p_2^{(1)}(t)$ et l'intensité du réseau de population.

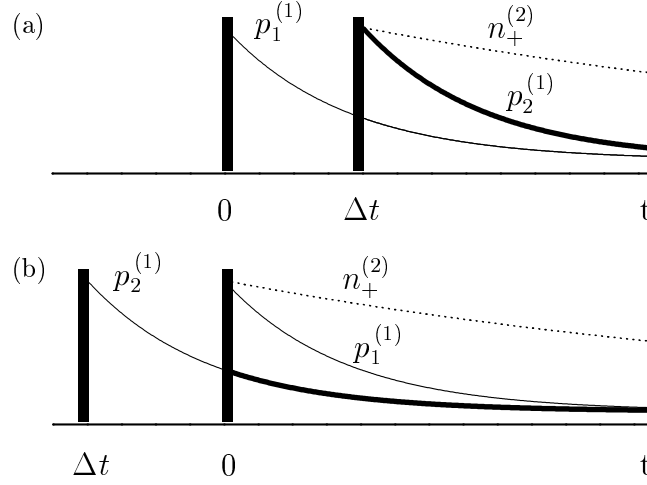


Fig. B.1: Allure de la polarisation d'ordre 1 et de la population dans le cas d'impulsions ultra-courtes, la première arrivant en $t = 0$, la seconde en $t = \Delta t$. La partie oscillante n'est pas montrée. $p_1^{(1)}$ (resp. $p_2^{(1)}$) est la partie de la polarisation d'ordre 1 due à la première (respectivement la seconde) impulsion. a) $\Delta t > 0$. Le champ de la seconde impulsion et la polarisation due à la seconde impulsion (trait en gras) peuvent être diffractés par le réseau. b) $\Delta t < 0$. Dans ce cas, seule la polarisation due à la seconde impulsion (et une partie seulement, trait en gras) est diffractée.

Pour $\Delta t < 0$, elle est maximale lorsque $t = 0$ (cf. fig. B.1) et vaut $n_{\max} p_2^{(1)}(0) \propto e^{2\Delta t/T_2}$: ici interviennent la variation de $p_2^{(1)}(t)$ et l'intensité du réseau de population.

Ainsi, $p_{\max}^{(3)}$ varie comme $e^{-\Delta t/T_2}$ pour $\Delta t > 0$ et comme $e^{2\Delta t/T_2}$ pour $\Delta t < 0$.

Pour les interactions coulombiennes, nous retrouvons bien pour l'intensité du mélange à quatre onde intégré en temps un temps de montée de $T_2/4$ et un temps de décroissance de $T_2/2$.

- Blocage de Pauli

Le terme source dû au blocage de Pauli est constitué par $\vec{E}_2 n^{(2)}$. Le terme source ne produit qu'un signal aux retards positifs (cf. annexe A), et son maximum, atteint en $t = \Delta t$ (cf. fig. B.1), vaut $\mathcal{E}_2 n^{(2)}(\Delta t)$: ici, seule joue l'intensité du réseau de population. L'intensité du mélange à quatre onde intégré en temps pour le blocage de Pauli décroît avec une constante de temps de $T_2/2$.

Annexe C

Signal de Ti-FWM dans la microcavité

Cette annexe précise l'origine des caractéristiques de la variation de l'intensité du mélange à quatre ondes, calculée dans le chapitre 4 (§ 4.3.4). En particulier, nous allons expliquer qualitativement la différence de contraste existant entre les courbes de Ti-FWM dues aux interactions de Coulomb et celles dues au blocage de Pauli.

Soit $\max(\Delta t)$ le maximum de $|P_{2k_2-k_1}^{(3)}(t, \Delta t)|$. Afin de simplifier l'analyse, on fait l'approximation que $|P_{2k_2-k_1}^{(3)}(t, \Delta t)|$ est égal à

$$|P_{2k_2-k_1}^{(3)}(t, \Delta t)| = \max(\Delta t) e^{-(t-\Delta t)/T_2} \cos(\Omega(t - \Delta t)) \theta(\Delta t)$$

alors

$$\int dt |P_{2k_2-k_1}^{(3)}(t, \Delta t)|^2 \propto (\max(\Delta t))^2$$

Le signal de Ti-FWM a donc les mêmes variations que $(\max(\Delta t))^2$.

Intéressons-nous alors à l'évolution du maximum de $|P_{2k_2-k_1}^{(3)}|$ en fonction du retard. $|P_{2k_2-k_1}^{(3)}|$ est maximum quand le terme source des non-linéarités est maximum. *Le signal de Ti-FWM a donc les mêmes variations que le carré du maximum du terme source.* La figure C.1 montre l'évolution temporelle des termes d'ordre 1 intervenant dans les termes sources, pour les interactions coulombiennes et le blocage de Pauli.

Cas des interactions coulombiennes

Le terme source correspondant est le produit de $P_{k_1}^{(1)*}$, qui décroît à partir de $t \gtrsim 0$ et de $P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}$ qui est non nul pour $t \gtrsim \Delta t$.

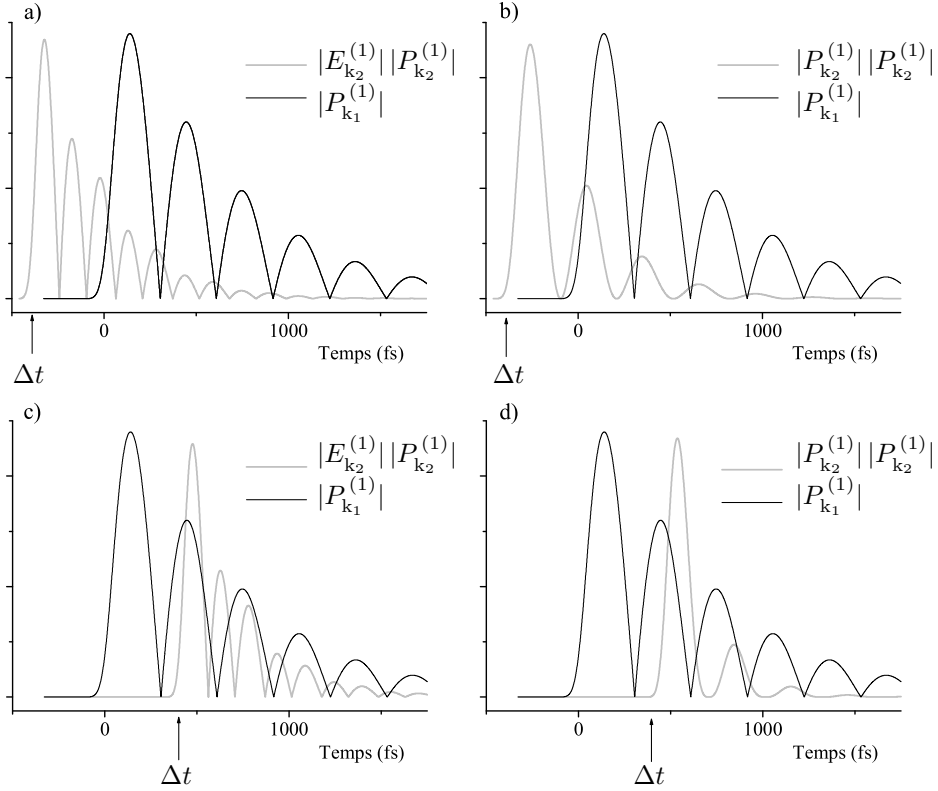


Fig. C.1: Évolution temporelle des termes d'ordre 1 intervenant dans les termes non-linéaires. a) et c) : Le terme de blocage de Pauli contient les quantités $E_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}$ et $P_{k_1}^{(1)*}$ dont l'évolution en module est représentée pour $\Delta t > 0$ (a) et $\Delta t < 0$ (c). b) et d) ; Les interactions coulombiennes font intervenir $P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}$ et $P_{k_1}^{(1)*}$, et l'évolution temporelle du module de ces quantités est représentée pour $\Delta t > 0$ (b) et $\Delta t < 0$ (d).

- $\Delta t > 0$, fig. C.1 d : le terme source est maximum approximativement en $\Delta t + t_0$, lorsque le terme $P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}$ a eu le temps t_0 d'atteindre son maximum ; il vaut alors $\max[P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}]$ multiplié par $P_{k_1}^{(1)*}(\Delta t + t_0)$; lorsque le retard varie, le maximum du terme source va suivre les variations de $\underline{P_{k_1}^{(1)*}(t)}$.

Enfinement, écrivons le terme source comme le produit d'une fonction due à la première impulsion $f_{k_1}(t)$ et d'une fonction due à la seconde impulsion $g_{k_2}(t)$. On vient de voir que lorsque le retard varie, le maximum du terme source sonde les variations de la première fonction qui arrive (pour $\Delta t > 0$, $f_{k_1}(t)$ et pour $\Delta t < 0$, $g_{k_2}(t)$).

- $\Delta t < 0$, fig. C.1 b : le maximum du terme source sonde les variations de $\underline{P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}(t)}$ donc oscille avec une enveloppe exponentielle, de constante de temps $T_2/2$.

Conclusion : le maximum de la polarisation d'ordre 3 oscille, et son enveloppe temporelle décroît exponentiellement avec la constante de temps T_2 pour les retards positifs et croît exponentiellement avec la constante de temps $T_2/2$. Remarquons que le contraste des oscillations de cette quantité est alors la même pour $\Delta t < 0$ ou $\Delta t > 0$, car $|P_{k_1}^{(1)*}|$ et $|P_{k_2}^{(1)} P_{k_2}^{(1)}|$ ont même période.

Cas du blocage de Pauli

Le terme source correspondant est le produit de $P_{k_1}^{(1)*}$, qui décroît à partir de $t \gtrsim 0$ et de $P_{k_2}^{(1)} E_{k_2}^{(1)}$ qui existe à partir de $t \gtrsim \Delta t$.

- $\Delta t > 0$, fig. C.1 c : le maximum du terme source sonde les variations de $\overline{P_{k_1}^{(1)}(t)}$ donc oscille avec une enveloppe exponentielle, de constante de temps T_2 , et avec un contraste comparable au cas des interactions coulombiennes.

- $\Delta t < 0$, fig. C.1 a : le maximum du terme source sonde les variations de $\overline{P_{k_2}^{(1)} E_{k_2}^{(1)}(t)}$. Cette quantité n'oscille pas avec la période $h/2\kappa$ comme les autres quantités considérées. En effet, le champ et la polarisation sont en opposition de phase (cf. § 4.3.1). C'est pourquoi le maximum de $P_{2k_2-k_1}^{(3)}$ va osciller avec une période moitié et un contraste très diminué, à l'intérieur d'une enveloppe exponentielle de constante de temps $T_2/2$.

Conclusion : le maximum de la polarisation d'ordre 3 oscille à l'intérieur d'une enveloppe identique au cas des interactions coulombiennes. La différence réside d'une part, dans la période aux retards négatifs (période moitié) et dans la différence de contraste entre les retards positifs et négatifs, où le contraste est faible. Cela est entièrement dû au déphasage entre le champ électrique et la polarisation.

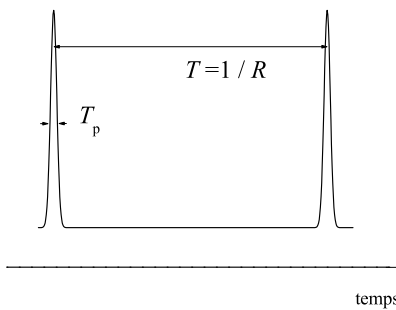
Annexe D

Calcul de la densité de porteurs

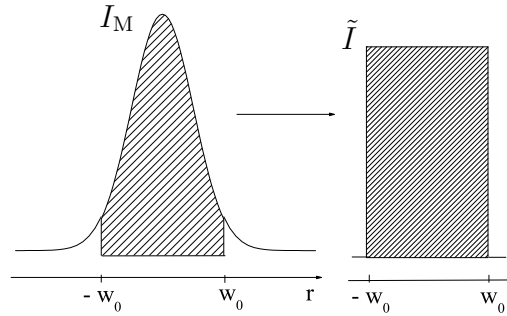
Nous présentons dans cette annexe le calcul de la densité de porteurs. Nous excitons notre échantillon de microcavité par des impulsions laser. Nous allons estimer le nombre de porteurs créés par impulsion et par unité de surface.

Soit $I_0(\omega)$ l'intensité incidente (homogène à une puissance par unité de surface), et $I_{\text{abs}}(\omega)$ l'intensité absorbée par la microcavité, pour une fréquence donnée. On note alors l'absorption $A(\omega) = I_{\text{abs}}(\omega)/I_0(\omega)$.

Il s'agit de déterminer l'intensité incidente par impulsion $I_0(\omega)$. La puissance du laser P mesurée avec un mesureur de puissance est une moyenne. Soit T_p la durée de l'impulsion (100 à 200 fs), et R le taux de répétition des impulsions correspondant à une période de 13,2 ns (cf. schéma ci-dessous). La puissance moyenne d'une impulsion est alors $P_p = \frac{1}{RT_p} P$.



L'impulsion a une extension spatiale, de forme gaussienne : $I_0(r) = I_M e^{-2r^2/w_0^2}$, où w_0 est le waist. Par souci de simplification, nous allons remplacer cette extension spatiale par sa moyenne sur un disque de rayon w_0 (cf. schéma ci-dessous).



La moyenne de la puissance P_1 contenue dans un disque de rayon w_0 est :

$$P_1 = \int_0^{w_0} 2\pi r I_0(r) dr = 0,865 \frac{\pi w_0^2 I_M}{2}$$

$$P_p = \int_0^\infty 2\pi r I_0(r) dr = \frac{\pi w_0^2 I_M}{2}$$

donc $P_1 = 0,865 P_p$. L'intensité moyenne \tilde{I} sur le waist est telle que $P_1 = \pi w_0^2 \tilde{I}$. On aboutit à

$$\tilde{I} = \frac{0,865}{\pi w_0^2} P_p$$

Pour tenir compte de la dépendance spectrale de l'intensité, nous mesurons le spectre du laser. En le normalisant, on obtient le profil normalisé $\mathcal{L}(\omega)$ tel que $\int \mathcal{L}(\omega) d\omega = 1$.

L'intensité incidente $I_0(\omega)$ vaut donc approximativement :

$$I_0(\omega) = \tilde{I} \mathcal{L}(\omega) = \frac{0,865}{\pi w_0^2} \frac{P}{RT_p} \mathcal{L}(\omega)$$

Le nombre de photons absorbés par unité de surface par impulsion est alors :

$$n = \int \frac{I_{\text{abs}}(\omega) T_p}{\hbar \omega} d\omega = \frac{0,865}{\pi w_0^2} \frac{P}{R} \int \frac{A(\omega) \mathcal{L}(\omega)}{\hbar \omega} d\omega \quad (\text{D.1})$$

En supposant que l'efficacité est de 100 %, un photon absorbé crée un porteur. Alors l'équation D.1 donne le nombre de porteurs créés par unité de surface par impulsion.

La taille du faisceau focalisé sur l'échantillon donne une bonne estimation de w_0 . Elle a été mesurée expérimentalement (200 μm). Le taux de répétition du laser R est égal à 76 MHz. P est la puissance d'un faisceau incident, donnée par le mesureur de puissance. \mathcal{L} est, comme nous l'avons vu le spectre normalisé du laser, mesuré expérimentalement. Enfin, $A(\omega)$ est l'absorption de la microcavité. Elle est évaluée par le calcul basé sur la méthode de matrices de transfert, à l'aide de paramètres déduits de l'ajustement de la réflectivité expérimentale $Ref(\omega)$.

Bibliographie

- [1] E. M. PURCELL, Spontaneous emission probabilities at radio frequencies, *Physical Review* **69**, p. 681 (1946).
- [2] S. HAROCHE & D. KLEPPNER, Cavity quantum electrodynamics, *Physics Today*, p. 24 (1989).
- [3] F. BERNARDOT, P. NUSSENZVEIG, M. BRUNE, J. M. RAIMOND & S. HAROCHE, Vacuum Rabi splitting observed on a microscopic atomic sample in a microwave cavity, *Europhysics Letters* **17**, p. 33 (1992).
- [4] R. J. THOMSON, G. REMPE & H. J. KIMBLE, Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity, *Physical Review Letters* **68**, p. 1132 (1992).
- [5] M. BRUNE, F. SCHMIDT-KALER, A. MAALI, J. DREYER, E. HAGLEY, J. M. RAIMOND & S. HAROCHE, Quantum Rabi oscillation : a direct test of field quantization in a cavity, *Physical Review Letters* **73**, p. 1138 (1996).
- [6] Y. YAMAMOTO & R. E. SLUSHER, Optical processes in microcavities, *Physics Today*, p. 66 (1993).
- [7] E. BURSTEIN & C. WEISBUCH (éditeurs), *Confined electrons and photons, new physics and applications* (Plenum press, New York, 1995).
- [8] H. YOKOYAMA, Physics and device applications of optical microcavities, *Science* **256**, p. 66 (1992).
- [9] K. D. CHOQUETTE & H. Q. HOU, Vertical-cavity surface emitting lasers : moving from research to manufacturing, *Proc. IEEE* **85**, p. 1730 (1997).
- [10] H. BENISTY, H. DE NEVE & C. WEISBUCH, Impact of planar microcavity effects on light extraction, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **34**, p. 1612 (1998).
- [11] J. M. GÉRARD, B. SERMAGE, B. GAYRAL, B. LEGRAND, E. COSTARD & V. THIERRY-MIEG, Enhanced spontaneous emission by quantum boxes in a monolithic optical microcavity, *Physical Review Letters* **81**, p. 1110 (1998).
- [12] B. GAYRAL, J. M. GÉRARD, A. LEMAÎTRE, C. DUPUIS, L. MANIN & J. L. PELOUARD, High-Q wet-etched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes, *Applied Physics Letters* **75**, p. 1908 (1999).

-
- [13] C. WEISBUCH, M. NISHIOKA, A. ISHIKAWA & Y. ARAKAWA, Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor microcavity, *Physical Review Letters* **69**, p. 3314 (1992).
- [14] J. RARITY & C. WEISBUCH (éditeurs), *Microcavities and photonic bandgaps : physics and applications* (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1996).
- [15] H. BENISTY, J.-M. GÉRARD, R. HOUDRÉ, J. RARITY & C. WEISBUCH (éditeurs), *Confined photon systems, fundamentals and applications* (Springer, Berlin, 1999).
- [16] R. HOUDRÉ, C. WEISBUCH, R. P. STANLEY, U. OESTERLE, P. PELLANDINI & M. ILEGEMS, Measurement of cavity-polariton dispersion curve from angle-resolved photoluminescence experiments, *Physical Review Letters* **73**, p. 2043 (1994).
- [17] R. P. STANLEY, R. HOUDRÉ, C. WEISBUCH, U. OESTERLE & M. ILEGEMS, Cavity-polariton photoluminescence in semiconductor microcavities : experimental evidence, *Physical Review B* **53**, p. 10995 (1996).
- [18] J. BLOCH & J. Y. MARZIN, Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range, *Physical Review B* **56**, p. 2103 (1997).
- [19] F. TASSONE, C. PIERMAROCCHI, V. SAVONA, A. QUATTROPANI & P. SCHWENDIMANN, Photoluminescence decay times in strong coupling regime semiconductor microcavities, *Physical Review B* **53**, p. R7642 (1996).
- [20] F. TASSONE, C. PIERMAROCCHI, V. SAVONA, A. QUATTROPANI & P. SCHWENDIMANN, Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons, *Physical Review B* **56**, p. 7554 (1997).
- [21] M. MÜLLER, J. BLEUSE & R. ANDRÉ, Dynamics of the cavity polariton in CdTe-based semiconductor microcavities : evidence for a relaxation edge, *Physical Review B* **62**, p. 16886 (2000).
- [22] A. IMAMOGLU, R. J. RAM, S. PAU & Y. YAMAMOTO, Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : exciton-polaritons lasers, *Physical Review A* **53**, p. 4250 (1996).
- [23] S. PAU, H. CAO, J. M. JACOBSON, G. BJÖRK & Y. Y. A. IMAMOGLU, Observation of a laserlike transition in a microcavity exciton polariton system, *Physical Review A* **54**, p. R1789 (1996).
- [24] H. CAO, S. PAU, J. M. JACOBSON, G. BJÖRK & Y. YAMAMOTO, Transition from a microcavity exciton polariton to a photon laser, *Physical Review A* **55**, p. 4632 (1997).
- [25] M. KIRA, F. JAHNKE, S. W. KOCH, J. D. BERGER, D. V. WICK, T. R. NELSON, JR., G. KHITROVA & H. M. GIBBS, Quantum theory of nonlinear semiconductor microcavity luminescence explaining "boson" experiments, *Physical Review Letters* **79**, p. 5170 (1997).

- [26] LE SI DANG, D. HEGER, R. ANDRÉ, F. BŒUF & R. ROMESTAIN, Stimulation of polariton photoluminescence in semiconductor microcavity, *Physical Review Letters* **81**, p. 3920 (1998).
- [27] P. G. SAVVIDIS, J. J. BAUMBERG, R. M. STEVENSON, M. S. SKOLNICK, D. M. WHITTAKER & J. S. ROBERTS, Angle-resonant stimulated polariton amplifier, *Physical Review Letters* **84**, p. 1547 (2000).
- [28] R. HUANG, F. TASSONE & Y. YAMAMOTO, Experimental evidence of stimulated scattering of excitons into microcavity polaritons, *Physical Review B* **61**, p. R7854 (2000).
- [29] M. SABA, C. CIUTI, J. BLOCH, V. THIERRY-MIEG, R. ANDRÉ, L. DANG, S. KUNDERMANN, A. MURA, G. BONGIOVANNI, J. L. STAEHLI & B. DEVAUD, High-temperature ultrafast polariton parametric amplification in semiconductor microcavities, *Nature* **414**, p. 731 (2001).
- [30] A. I. TARTAKOVSKII, D. N. KRIZHANOVSKII & V. D. KULAKOVSKII, Polariton-polariton scattering in semiconductor microcavities : distinctive features and similarities to the three-dimensional case, *Physical Review B* **62**, p. R13298 (2000).
- [31] P. G. SAVVIDIS, J. J. BAUMBERG, R. M. STEVENSON, M. S. SKOLNICK, D. M. WHITTAKER & J. S. ROBERTS, Asymmetric angular emission in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **62**, p. R13278 (2000).
- [32] G. DASBACH, T. BAARS, M. BAYER, A. LARIONOV & A. FORCHEL, Coherent and incoherent polaritonic gain in a planar semiconductor microcavity, *Physical Review B* **62**, p. 13076 (2000).
- [33] R. M. STEVENSON, V. N. ASTRATOV, M. S. SKOLNICK, D. M. WHITTAKER, M. EMAM-ISMAIL, A. I. TARTAKOVSKII, P. G. SAVVIDIS, J. J. BAUMBERG & J. S. ROBERTS, Continuous wave observation of massive polariton redistribution by stimulated scattering in semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **85**, p. 3680 (2000).
- [34] J. J. BAUMBERG, P. G. SAVVIDIS, R. M. STEVENSON, A. I. TARTAKOVSKII, M. S. SKOLNICK, D. M. WHITTAKER & J. S. ROBERTS, Parametric oscillation in a vertical microcavity : a polariton condensate or micro-optical parametric oscillation, *Physical Review B* **62**, p. R16247 (2000).
- [35] P. SENELLART, J. BLOCH, B. SERMAGE & J. Y. MARZIN, Microcavity polariton depopulation as evidence for stimulated scattering, *Physical Review Letters* **62**, p. R16263 (2000).
- [36] G. MESSIN, J. P. KARR, A. BAAS, G. KHITROVA, R. HOUDRÉ, R. P. STANLEY, U. OESTERLE & E. GIACOBINO, Parametric polariton amplification in semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **87**, p. 127403 (2001).

- [37] G. MALPUECH, A. KAVOKIN, A. D. CARLO & J. J. BAUMBERG, Polariton lasing by exciton-electron scattering in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **65**, p. 153310 (2002).
- [38] D. S. CHEMLA, Nonlinear optics in semiconductors I, in *Semiconductors and semimetals* (édité par R. K. WILLIARSON, E. R. WEBER, E. GARMIERE & A. KOST), volume 58 (Academic Press, Chesnut Hill, MA, 1998).
- [39] J. SHAH, *Ultrafast spectroscopy of semiconductors and semiconductor nanostructures* (Springer-Verlag, Berlin, 1999), 2^e édition.
- [40] H. WANG, J. SHAH, T. C. DAMEN, W. Y. JAN, J. E. CUNNINGHAM, M. HONG & J. P. MANNAERTS, Coherent oscillations in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **51**, p. 14713 (1995).
- [41] P. V. KELKAR, V. G. KOZLOV, A. V. NURMIKKO, C.-C. CHU, J. HAN & R. L. GUNSHOR, Stimulated emission, gain, and coherent oscillations in II-VI semiconductor microcavities, *Physical Review B* **56**, p. 7564 (1997).
- [42] M. KOCH, J. SHAH & T. MEIER, Coupled absorber-cavity system : Observation of a characteristic nonlinear response, *Physical Review B* **57**, p. R2049 (1998).
- [43] M. KUWATA-GONOKAMI, S. INOUE, H. SUZUURA, M. SHIRANE, R. SHIMANO, T. SOMEYA & H. SAKAKI, Parametric scattering of cavity polaritons, *Physical Review Letters* **79**, p. 1341 (1997).
- [44] Y. FU, M. WILLANDER, E. L. IVCHENKO & A. A. KISELEV, Four-wave mixing in microcavities with embedded quantum wells, *Physical Review B* **55**, p. 9872 (1997).
- [45] H. WANG, H. Q. HOU & B. E. HAMMONS, Coherent dynamics of excitonic nonlinear optical response in the nonperturbative regime, *Physical Review Letters* **81**, p. 3255 (1998).
- [46] G. BONGIOVANNI, A. MURA, F. QUOCCHI, S. GÜRTLER, J. L. STAEHLI, F. TASSONE, R. P. STANLEY, U. OESTERLE & R. HOUDRÉ, Coherent exciton-photon dynamics in semiconductor microcavities : The influence of inhomogeneous broadening, *Physical Review B* **55**, p. 7084 (1997).
- [47] F. QUOCCHI, G. R. HAYES, R. ANDRÉ, G. BONGIOVANNI, A. MURA, J. L. STAEHLI & LE SI DANG, Coherent exciton-photon dynamics in high-quality II-VI semiconductor microcavities, *Journal of Crystal Growth* **184/185**, p. 754 (1998).
- [48] S. SCHMITT-RINK & D. S. CHEMLA, Collective excitations and the dynamical Stark effect in a coherently driven exciton system, *Physical Review Letters* **57**, p. 2752 (1986).
- [49] H. HAUG & S. W. KOCH, *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors* (World Scientific, Singapore, 1993), 2^e édition.

- [50] M. WEGENER, D. S. CHEMLA, S. SCHMITT-RINK & W. SCHÄFER, Line shape of time-resolved four-wave mixing, *Physical Review A* **42**, p. 5675 (1990).
- [51] C. CIUTI, V. SAVONA, C. PIERMAROCCHI, A. QUATTROPANI & P. SCHWENDIMANN, Threshold behavior in the collision broadening of microcavity polaritons, *Physical Review B* **58**, p. R10123 (1998).
- [52] G. H. WANNIER, The structure of electronic excitation levels in insulating crystals, *Physical Review* **52**, p. 191 (1937).
- [53] G. BASTARD, *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures* (Les éditions de physique, 1988).
- [54] L. C. ANDREANI, Optical transitions, excitons, and polaritons in bulk and low-dimensional semiconductor structures, in *Confined electrons and photons* (édité par E. BURSTEIN & C. WEISBUCH) (Plenum Press, New York, 1995).
- [55] C. COHEN-TANNOUJJI, B. DIU & F. LALOË, *Mécanique quantique* (Hermann, Paris, 1977).
- [56] H. HAUG & S. SCHMITT-RINK, Basic mechanisms of the optical nonlinearities of semiconductors near the band-edge, *J.Opt.Soc.Am.B* **2**, p. 1135 (1985).
- [57] S. SCHMITT-RINK, D. S. CHEMLA & D. A. B. MILLER, Theory of transient excitonic nonlinearities in semiconductor quantum-well structures, *Physical Review B* **32**, p. 6601 (1985).
- [58] D. HUANG, J.-I. CHYI & H. MORKOÇ, Carrier effects on the excitonic absorption in GaAs quantum well structures : phase space filling, *Physical Review B* **42**, p. 5147 (1990).
- [59] M. BORN & E. WOLF, *Principles of Optics* (Pergamon Press, London, 1964), 2^e édition.
- [60] P. YEH, *Optical waves in layered media* (Wiley, New York, 1988).
- [61] J. TIGNON, *Étude de propriétés optiques de puits quantiques dans deux cas limites : puits quantiques peu profonds, microcavités de semiconducteurs*, Thèse de doctorat, Université Paris VI (1996).
- [62] V. SAVONA, L. C. ANDREANI, P. SCHWENDIMANN & A. QUATTROPANI, Quantum well excitons in semiconductor microcavities : unified treatment of weak and strong coupling regimes, *Solid State Communications* **93**, p. 733 (1995).
- [63] V. SAVONA, Linear optical properties of semiconductor microcavities with embedded quantum wells, in *Confined photon systems, fundamentals and applications* (édité par H.BENISTY, J.-M.GÉRARD, R.HOUDRÉ, J.RARITY & C.WEISBUCH) (Springer, Berlin, 1999).

- [64] R. HOUDRÉ, J. L. GIBERNON, P. PELLANDINI, R. P. STANLEY, U. OESTERLE, C. WEISBUCH, J. O'GORMAN, B. ROYCROFT & M. ILEGEMS, Saturation of the strong-coupling regime in semiconductor microcavity : free-carrier bleaching of cavity polaritons, *Physical Review B* **52**, p. 7810 (1995).
- [65] S. MUKAMEL, *Principles of nonlinear optical spectroscopy* (Oxford university press, Oxford, 1995).
- [66] Y. R. SHEN, *The principles of nonlinear optics* (John Wiley and sons, New York, 1984).
- [67] C. COHEN-TANNOUJJI, J. DUPONT-ROC & G. GRYNBERG, *Processus d'interaction entre photons et atomes* (InterEditions/Éditions du CNRS, Paris, 1988).
- [68] K. LEO, M. WEGENER, J. SHAH, D. S. CHEMLA, E. O. GÖBEL, T. C. DAMEN, S. SCHMITT-RINK & W. SCHÄFER, Effects of coherent polarization interactions on time-resolved degenerate four-wave mixing, *Physical Review Letters* **65**, p. 1340 (1990).
- [69] S. WEISS, M.-A. M. J.-L. BIGOT, S. SCHMITT-RINK & D. S. CHEMLA, Collective effects in excitonic free induction decay : do semiconducteurs and atoms emit coherent light in different ways?, *Physical Review Letters* **69**, p. 2685 (1992).
- [70] D.-S. KIM, J. SHAH, T. C. DAMEN, W. SCHÄFER, F. JAHNKE, S. SCHMITT-RINK & K. KÖLER, Unusual slow temporal evolution of femtosecond four-wave-mixing signals in intrinsic GaAs quantum wells : direct evidence for the dominance of interaction effects, *Physical Review Letters* **69**, p. 2725 (1992).
- [71] C. STAFFORD, S. SCHMITT-RINK & W. SCHÄFER, Nonlinear optical response of two-dimensional magnetoexcitons, *Physical Review B* **41**, p. 10000 (1990).
- [72] A. HONOLD, L. SCHULTHEIS, J. KUHL & C. TU, Collision broadening of two-dimensional excitons in a GaAs single quantum well, *Physical Review B* **40**, p. 6442 (1989).
- [73] G. KHITROVA, H. M. GIBBS, F. JAHNKE, M. KIRA & S. W. KOCH, Nonlinear optics of normal-mode-coupling semiconductor microcavities, *Review of Modern Physics* **71**, p. 1591 (1999).
- [74] H. WANG, K. B. FERRIO, D. G. STEEL, Y. Z. HU, R. BINDER & S. W. KOCH, Transient nonlinear optical response from excitation induced dephasing in GaAs, *Physical Review Letters* **71**, p. 1261 (1993).
- [75] H. WANG, K. B. FERRIO, D. G. STEEL, P. R. BERMAN, Y. Z. HU, R. BINDER & S. W. KOCH, Transient four-wave-mixing line shapes : effets of excitation-induced dephasing, *Physical Review A* **49**, p. R1551 (1994).

-
- [76] C. CIUTI, V. SAVONA, C. PIERMAROCCHI, A. QUATTROPANI & P. SCHWENDIMANN, Role of the exchange of carriers in elastic exciton-exciton scattering in quantum wells, *Physical Review B* **58**, p. 7926 (1998).
- [77] S. SCHMITT-RINK, S. MUKAMEL, K. LEO, J. SHAH & D. S. CHEMLA, Stochastic theory of time-resolved four-wave mixing in interacting media, *Physical Review A* **44**, p. 2124 (1991).
- [78] P. KNER, S. BAR-AD, M. V. MARQUEZINI, D. S. CHEMLA & W. SCHÄFER, Magnetically enhanced exciton-exciton correlations in semiconductors, *Physical Review Letters* **78**, p. 1319 (1997).
- [79] P. KNER, W. SCHÄFER, R. LÖVENICH & D. S. CHEMLA, Coherence of four particle correlations in semiconductors, *Physical Review Letters* **81**, p. 5386 (1998).
- [80] P. KNER, S. BAR-AD, M. V. MARQUEZINI, D. S. CHEMLA, R. LÖVENICH & W. SCHÄFER, Effect of magnetoexciton correlations on the coherent emission of semiconductors, *Physical Review B* **60**, p. 4731 (1999).
- [81] V. M. AXT & A. STAHL, A dynamics-controlled truncation scheme for the hierarchy of density matrices in semiconductor optics, *Zeitschrift für Physik B* **93**, p. 195 (1994).
- [82] V. M. AXT & A. STAHL, The role of the biexciton in a dynamic density matrix theory of the semiconductor band edge, *Zeitschrift für Physik B* **93**, p. 205 (1994).
- [83] W. SCHÄFER, D. S. KIM, J. SHAH, T. C. DAMEN, J. E. CUNNINGHAM, K. W. GOOSSEN, L. N. PFEIFFER & K. KHÖHLER, Femtosecond coherent fields induced by many-particle correlations in transient four-wave mixing, *Physical Review B* **53**, p. 16429 (1996).
- [84] U. NEUKIRCH, S. R. BOLTON, N. A. FROMER, L. J. SHAM & D. S. CHEMLA, Polariton-biexciton transitions in a semiconductor microcavity, *Physical Review Letters* **84**, p. 2215 (2000).
- [85] N. A. FROMER, P. KNER, D. S. CHEMLA, R. LÖVENICH & W. SCHÄFER, Correlations effects beyond hartree-fock theory and polarization dependence of four wave mixing in bulk GaAs at high magnetic field, *Physical Review B* **62**, p. 2516 (2000).
- [86] U. NEUKIRCH, S. R. BOLTON, L. J. SHAM & D. S. CHEMLA, Electronic four-particle correlations transitions in semiconductors : Renormalization of coherent pump-probe oscillations, *Physical Review B* **61**, p. R7835 (2000).
- [87] J. K. FURDYNA, Diluted magnetic semiconductors, *Journal of Applied Physics* **64**, p. R29 (1988).
- [88] J. M. HARTMANN, J. CIBERT, F. KANY, H. MARIETTE, M. CHARLEUX, P. ALLEYSSON, R. LANGER & G. FEUILLET, CdTe/MgTe heterostructures : Growth by atomic layer epitaxy and determination of MgTe parameters, *Journal of Applied Physics* **80**, p. 6257 (1996).

- [89] B. KUHN-HEINRICH, W. OSSAU, H. HEINHE, F. FISCHER, T. LITZ, A. WAAG & G. LANDWEHR, Optical investigation of confinement and strain effects in CdTe/(CdMg)Te quantum wells, *Applied Physics Letters* **63**, p. 2932 (1993).
- [90] M.-Z. HUANG & W. Y. CHING, Calculations of optical excitation in cubic semiconductors. I. Electronic structure and linear response, *Physical Review B* **47**, p. 9449 (1993).
- [91] R. ANDRÉ & LE SI DANG, Low-temperature refractive indices of Cd_{1-x}Mn_xTe and Cd_{1-y}Mn_yTe, *Journal of Applied Physics* **82**, p. 5086 (1997).
- [92] F. BŒUF, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN, LE SI DANG, E. PÉRONNE, J. F. LAMPIN, D. HULIN & A. ALEXANDROU, Evidence of polariton stimulation in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **62**, p. R2279 (2000).
- [93] Y. M. D'AUBIGNÉ, H. MARIETTE, N. MAGNEA, H. TUFFIGO, R. T. COX, G. LENTZ, D. LE SI DANG, J.-L. PAUTRAT & A. WASIELA, Optical properties of CdTe/Cd_{1-x}Zn_xTe quantum wells and superlattices, *Journal of Crystal Growth* **101**, p. 650 (1990).
- [94] R. ANDRÉ, D. HEGER, D. LE SI DANG & Y. M. D'AUBIGNÉ, Spectroscopy of polaritons of CdTe-based microcavities, *Journal of Crystal Growth* **184/185**, p. 758 (1998).
- [95] S. ADACHI, T. TSUCHIYA, H. MINO, S. TAKEYAMA, G. KARCEWSKI, T. WOJITOWICZ & J. KOSSUT, Dynamical spin properties of exciton and biexciton in CdMnTe/CdTe/CdMgTe single quantum well, *Physica E* **10**, p. 305 (2001).
- [96] C. NEUMANN, A. NÖTHER & N. O. LIPARI, Two-photon magnetoabsorption of ZnTe, CdTe, GaAs, *Physical Review B* **37**, p. 922 (1988).
- [97] D. M. WHITTAKER, P. KINSLER, T. A. FISHER, M. S. SKOLNICK, A. ARMITAGE, A. M. AFSHAR, M. D. STURGE & J. S. ROBERTS, Motional narrowing in semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **77**, p. 4792 (1996).
- [98] J. J. BAUMBERG, A. P. HEBERLE, A. V. KAVOKIN, M. R. VLADIMIROVA & K. KÖHLER, Polariton motional narrowing in semiconductor multiple quantum wells, *Physical Review Letters* **80**, p. 3567 (1998).
- [99] C. ELL, J. PRINEAS, T. R. N. JR., S. PARK, H. M. GIBBS, G. KHITROVA, S. W. KOCH & R. HOUDRÉ, Influence of structural disorder and light coupling on the excitonic response of semiconductor microcavities, *Physical Review B* **80**, p. 4795 (1998).
- [100] V. SAVONA, C. PIERMAROCCHI, A. QUATTROPANI, F. TASSONE & P. SCHWENDIMANN, Microscopic theory of motional narrowing of microcavity polaritons in a disordered potential, *Physical Review Letters* **78**, p. 4470 (1997).

- [101] R. HOUDRÉ, R. P. STANLEY & M. ILEGEMS, Vacuum-field Rabi splitting in the presence of inhomogeneous broadening : Resolution of a homogeneous linewidth in an inhomogeneously broadened system, *Physical Review A* **53**, p. 2711 (1996).
- [102] A. KAVOKIN, Motional narrowing of inhomogeneously broadened excitons in a semiconductor microcavity : Semiclassical treatment, *Physical Review Letters* **57**, p. 3757 (1998).
- [103] G. CASSABOIS, A. L. C. TRIQUES, D. LAROUSSE, C. DELALANDE, P. ROUSSIGNOL, P. SENNELART-MARDON, J. BLOCH, V. THIERRY-MIEG & R. PLANEL, Stationary coherence in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **59**, p. R10429 (1999).
- [104] T. BRUNHES, R. ANDRÉ, A. ARNOULT, J. CIBERT & A. WASIELA, Oscillator strength transfer from X to X^+ in a CdTe quantum-well microcavity, *Physical Review B* **60**, p. 11568 (1999).
- [105] R. HOUDRÉ, C. WEISBUCH, R. P. STANLEY, U. OESTERLE & M. ILEGEMS, Nonlinear emission of semiconductor microcavities in the strong coupling regime, *Physical Review Letters* **85**, p. 2793 (2000).
- [106] J. ERLAND, V. MIZEIKIS, W. LANGBEIN, J. R. JENSEN & J. M. HVAM, Stimulated secondary emission from semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **56**, p. 5791 (2001).
- [107] P. G. SAVVIDIS, J. J. BAUMBERG, D. PORRAS, D. M. WHITTAKER, M. S. SKOLNICK & J. S. ROBERTS, Ring emission and exciton-pair scattering in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **65**, p. 073309 (2002).
- [108] P. SENNELART & J. BLOCH, Nonlinear emission of microcavity polaritons in the low density regime, *Physical Review Letters* **82**, p. 1233 (1999).
- [109] A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Experimental determination of intrinsic non-linearities in semiconductor microcavities in the coherent regime, *Physica Status Solidi (a)* **190**, p. 345 (2002).
- [110] A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Coherent dynamics of microcavity polaritons in the non-linear regime, *Physica E* **13**, p. 427 (2002).
- [111] A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Experimental determination of intrinsic non-linearities in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **66**, p. 113301 (2002). Sélectionné pour publication dans *Virtual Journal of Ultrafast Science*, <http://www.vjulfast.org>.
- [112] A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Phase space filling contribution to the

- polariton nonlinear dynamics in the non-perturbative regime, in *Proceedings of 10th Quantum Electronics and Laser Science Conference* (2002).
- [113] T. B. NORRIS, J.-K. RHEE, C.-Y. SUNG, Y. ARAKAWA, M. NISHIOKA & C. WEISBUCH, Time-resolved vacuum Rabi oscillations in a semiconductor quantum microcavity, *Physical Review B* **50**, p. 14663 (1994).
- [114] M. KOCH, J. FELDMANN, G. V. PLESSEN, E. O. GÖBEL, P. THOMAS & K. KÖHLER, Quantum beats versus polarization interference : an experimental distinction, *Physical Review Letters* **69**, p. 3631 (1992).
- [115] V. G. LYSSENKO, J. ERLAND, I. BALSLEV, K.-H. PANTKE, B. S. RAZBIRIN & J. M. HVAM, Nature of nonlinear four-wave-mixing beats in semiconductors, *Physical Review B* **48**, p. 5720 (1993).
- [116] X. FAN, H. WANG, H. Q. HOU & B. E. HAMMONS, Biexcitonic effects in the nonperturbative regime of semiconductor microcavities, *Physical Review B* **57**, p. R9451 (1998).
- [117] P. BORRI, W. LANGBEIN, U. WOGGON, J. R. JENSEN & J. M. HVAM, Biexciton or bipolariton in a semiconductor microcavity, *Physical Review B* **62**, p. R7763 (2000).
- [118] M. SABA, F. QUOCHI, C. CIUTI, U. OESTERLE, J. L. STAEHLI, B. DEVEAUD, G. BONGIOVANNI & A. MURA, Crossover from exciton to biexciton polaritons in semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **85**, p. 385 (2000).
- [119] T. BAARS, G. DASBACH, M. BAYER & A. FORCHEL, Biexciton states in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **63**, p. 165311 (2001).
- [120] Y. P. SVIRKO & M. KUWATA-GONOKAMI, Signatures of the excitonic memory effects in four-wave mixing processes in cavity polaritons, *Physical Review B* **62**, p. 6912 (2000).
- [121] N. H. KWONG, R. TAKAYAMA, I. RUMYANTSEV, M. KUWATA-GONOKAMI & R. BINDER, Third order exciton-correlation and nonlinear cavity-polariton effects in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **64**, p. 045316 (2001).
- [122] J. J. BAUMBERG, A. HERMITAGE, M. S. SKOLNICK & J. S. ROBERTS, Suppressed polariton scattering in semiconductor microcavities, *Physical Review Letters* **81**, p. 661 (1998).
- [123] F. TASSONE & Y. YAMAMOTO, Exciton-exciton scattering dynamics in a semiconductor microcavity and stimulated scattering into polaritons, *Physical Review B* **59**, p. 10830 (1999).
- [124] C. CIUTI, P. SCHWENDIMANN, B. DEVAUD & A. QUATTROPANI, Theory of the angle-resonant polariton amplifier, *Physical Review B* **62**, p. R4825 (2000).

-
- [125] C. CIUTI, P. SCHWENDIMANN & A. QUATTROPANI, Parametric luminescence of microcavity polaritons, *Physical Review B* **63**, p. 041303 (2001).
- [126] H. HAUG & S. SCHMITT-RINK, Basic mechanisms of the optical nonlinearities of semiconductor near the band edge, *Journal of the optical society of America B* **2**, p. 1135 (1985).
- [127] J. WAINSTAIN, *Relaxation de polaritons dans une microcavité de semiconducteurs*, Thèse de doctorat, Université Paris VI (1997).
- [128] T. BAARS, M. BAYER, A. FORCHEL, F. SCHÄFER & J. P. REITHMAIER, Polariton-polariton scattering in semiconductor microcavities : experimental observation of thresholdlike density dependance, *Physical Review B* **61**, p. R2409 (2000).
- [129] A. I. TARTAKOVSKII, V. D. KULAKOVSKII, D. N. KRIZHANOVSKII, M. S. SKOLNICK, V. N. ASTRANOV, A. ARMITAGE & J. S. ROBERTS, Relaxation bottleneck and its suppression in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **62**, p. R2283 (2000).
- [130] R. BUTTÉ, G. DELALLEAU, A. I. TARTAKOVSKII, M. S. SKOLNICK, V. N. ASTRANOV, J. J. BAUMBERG, G. MALPUECH, A. D. CARLO, A. V. KAVOKIN & J. S. ROBERTS, Transition from strong to weak coupling and the onset of lasing in semiconductor microcavities, *Physical Review B* **65**, p. 205310 (2002).
- [131] D. M. WHITTAKER, Classical treatment of parametric processes in a strong-coupling planar microcavity, *Physical Review B* **63**, p. 193305 (2001).
- [132] A. HUYNH, J. TIGNON, O. LARSSON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Polariton parametric amplifier pump dynamics in the coherent regime. Accepted, *Physical Review Letters*.
- [133] A. HUYNH, J. TIGNON, O. LARSSON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Angle-resolved polariton coherent dynamics in semiconductor microcavities, in *Proceedings of 10th Quantum Electronics and Laser Science Conference* (2002).
- [134] A. HUYNH, J. TIGNON, O. LARSSON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Angle-dependant polariton collisional broadening in semiconductor microcavities. À paraître dans *Physica E*.
- [135] A. HUYNH, J. TIGNON, O. LARSSON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Coherence quenching at the magic angle in semiconductor microcavities, in *Proceedings of 26th International Conference on the Physics of Semiconductors* (2002).

-
- [136] M. MÜLLER, R. ANDRÉ, J. BLEUSE, R. ROMESTAIN, D. LE SI DANG, A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL & C. DELALANDE, Non-linear polariton dynamics in II-VI microcavities, in *Semiconductor Science and technology 2003, topical issue « Microcavity structures »* (édité par J. BAUMBERG & L. VIÑA) (Sarah Quin publishers, Bristol). À paraître début 2003.
- [137] A. HUYNH, J. TIGNON, G. KELLER, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG, Collision broadening in II-VI semiconductor microcavities. Soumis début 2003 à *Physical Review B*.
- [138] M. COMBESCOT & O. BETBEDER-MATIBET, The effective bosonic Hamiltonian for excitons reconsidered, *Europhysics Letters* **58**, p. 87 (2002).
- [139] O. BETBEDER-MATIBET & M. COMBESCOT, Commutation technique for interacting close-to-boson excitons, *European Physical Journal B* **27**, p. 505 (2002).
- [140] M. COMBESCOT & O. BETBEDER-MATIBET, Effective bosonic Hamiltonian for excitons : a too naive concept, *Europhysics Letters* **59**, p. 579 (2002).
- [141] F. BËUF, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN, LE SI DANG, E. PÉRONNE, J. F. LAMPIN, D. HULIN & A. ALEXANDROU, Mechanism of polariton-stimulation in CdTe-based microcavity, *Physica Status Solidi (a)* **178**, p. 129 (2000).
- [142] R. ANDRÉ, Communication privée.
- [143] A. YARIV, *Optical electronics* (Saunders College Pub., Philadelphia, 1991).
- [144] A. HUYNH, J. TIGNON, P. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE, R. ANDRÉ, R. ROMESTAIN & D. LE SI DANG. Article en préparation.
- [145] M. LINDBERG & S. W. KOCH, Effective Bloch equations for semiconductors, *Physical Review B* **38**, p. 3342 (1988).

Abstract

Semiconductor microcavity polaritons coherent dynamics

In semiconductor microcavities, a strong coupling regime can be achieved between the Fabry-Pérot cavity mode and the confined exciton of the quantum well. It results in new eigenstates, which are mixed photon-exciton states, the microcavity polaritons. As compared to bare excitons, microcavity polaritons have a very different dispersion and density of states, which induce a strong modification of the nonlinearities and the optical properties of the system.

This work is devoted to the study of the coherent nonlinear dynamics by means of four wave mixing experiments.

Due to their excitonic component, polaritons can interact via Coulomb interaction as well as phase space filling (Pauli blocking). First, we determine the contribution of these intrinsic nonlinearities to the coherent response of the system, by analysing our measurements thanks to the numerical resolution of the Maxwell-Bloch equations.

Then, in order to study the influence of the dispersion on the polaritons dynamics, we have performed an angle-resolved four wave mixing experiment. We show an inhibition of the loss of the coherence in the center of the Brillouin zone. These results are in very good agreement with a model describing the collision broadening due to polariton-polariton scattering, which remains weak as long as the excitonic reservoir is not accessible. Additionally, in the parametric oscillation regime, when the polariton-polariton scattering can be stimulated by final state occupation, we study the dynamics of the pump polaritons. We find a very strong quenching of the coherence under excitation at the « magic angle ».

Keywords :

Polariton
Microcavity

Coherence
II-VI semiconductor

Four wave mixing

Agnès Huÿnh

Dynamique cohérente des polaritons de microcavité de semiconducteurs

Résumé

Dans les microcavités de semiconducteurs, un régime de couplage fort peut être obtenu entre le mode Fabry-Pérot de la cavité et l'exciton confiné dans le puits quantique. Il se traduit par l'apparition de nouveaux états propres, les polaritons de microcavité, états mixtes exciton-photon, dont la dispersion et la densité d'états sont très différentes de celles d'un exciton nu. Il en résulte une profonde modification des non-linéarités et des propriétés optiques du système.

Cette thèse est consacrée à l'étude de la dynamique cohérente et non-linéaire des polaritons de microcavité au moyen d'expériences de mélange à quatre ondes.

Par leur composante excitonique, les polaritons peuvent interagir par interaction coulombienne, mais sont aussi sensibles au remplissage de l'espace des phases (blocage de Pauli). Dans un premier temps nous déterminons la contribution de ces non-linéarités intrinsèques à la réponse cohérente du système en analysant nos mesures grâce à la résolution numérique des équations de Maxwell-Bloch.

Dans un deuxième temps, afin d'étudier l'influence de la dispersion sur la dynamique des polaritons, nous avons effectué une expérience de mélange à quatre ondes résolue en angle. Nous mettons en évidence une inhibition de la perte de cohérence en centre de zone de Brillouin. Ces résultats sont en très bon accord avec un modèle d'élargissement collisionnel gouverné par la diffusion polariton-polariton, qui reste faible tant que le réservoir excitonique n'est pas accessible. D'autre part, en régime d'oscillation paramétrique, dans lequel la diffusion polariton-polariton peut être stimulée par l'occupation de l'état final, nous étudions la dynamique des polaritons de pompe. Nous trouvons alors une forte perte de cohérence sous excitation à « l'angle magique ».

Mots clefs :

Polariton
Microcavité

Cohérence
semiconducteur II-VI

Mélange à quatre ondes