



HAL
open science

Vers une source de photons uniques indiscernables a l'aide de boites quantiques semiconductrices II-VI.

Christophe Couteau

► **To cite this version:**

Christophe Couteau. Vers une source de photons uniques indiscernables a l'aide de boites quantiques semiconductrices II-VI. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT: . tel-00110837

HAL Id: tel-00110837

<https://theses.hal.science/tel-00110837>

Submitted on 1 Nov 2006

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.

Vers une Source de Photons Uniques Indiscernables Produits par des Boîtes Quantiques Semiconductrices II-VI

THÈSE

soutenue publiquement le 12 Décembre 2005

pour l'obtention du

Doctorat de l'université Paris-Sud XI – Orsay

Spécialité: Optique Quantique

par

Christophe COUTEAU

Composition du jury

<i>Examineurs :</i>	Philippe Boucaud	Examineur
	Christian Delsart	Président
	Jean-Michel Gérard	Examineur
	Jean-Philippe Poizat	Directeur de Thèse
	Philippe Roussignol	Rapporteur
	François Treussart	Rapporteur

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Trois années...

Il s'est passé beaucoup de choses en 3 années. Des bonnes et des moins bonnes. Durant ces 3 années, j'ai appris beaucoup mais je crois que ce que j'ai appris de plus important, c'est qu'une thèse de doctorat est une aventure scientifique bien entendu, mais aussi, et peut être surtout, une aventure humaine.

Lorsque je suis arrivé au Laboratoire de Spectrométrie Physique le 2 septembre 2002, je ne connaissais personne, à une exception près, qui est la première personne que je vais remercier.

Je remercie mon Directeur de Thèse Jean-Philippe Poizat pour m'avoir "embarqué dans sa galère". Nous sommes arrivés quasiment en même temps au laboratoire et à l'époque, le groupe d'Optique Quantique de Spectrométrie Physique était constitué de 2 personnes : lui et moi... Nous avons formé une bonne équipe durant ces 3 années et je le remercie d'avoir été disponible et d'avoir veillé au bon déroulement de ce travail de thèse.

Aujourd'hui, le groupe comprend 3 permanents, 1 post-doc et 1 thésard, avec la venue de 2 autres post-docs dans les prochains mois sans compter les membres ponctuels qui sont présents lorsque cela est nécessaire. Nul doute que le groupe s'est étoffé quelque peu.

Je remercie ensuite Christian Delsart et surtout Jacques Bauche, Directeur de l'Ecole Doctorale "Ondes et Matière" de l'Université d'Orsay pour avoir accepté, à mon retour d'Oxford, de me laisser partir pour Grenoble avec une bourse de Paris-Sud. J'ai cru comprendre que cela est une situation exceptionnelle et je suis bien heureux d'en avoir bénéficié.

Durant ma thèse, j'ai eu la chance de rencontrer Philippe Roussignol au cours d'une réunion dans laquelle j'ai tout de suite vu la qualité du chercheur. J'ai eu encore plus de chance qu'il accepte d'être l'un de mes rapporteurs. Un merci au deuxième rapporteur, je suis reconnaissant à François Treussart de bien vouloir "rapporter" ma thèse pour sa première fois. Je remercie également les autres membres du jury : Christian Delsart qui a présidé ce jury et que je connais depuis que je suis tout "petit" (je suivais ses cours de physique des lasers durant ma maîtrise de physique à Orsay) et Philippe Boucaud dont les discussions sur les boîtes quantiques m'ont toujours stimulé lors de nos rencontres.

Je remercie Le Si Dang, responsable de l'équipe NPSC (Nanophysique et Semiconducteur), (qui s'appelait OPSO pour Optique du Solide lorsque je suis arrivé au labo) qui est l'équipe mixte CNRS-UJF-CEA actuelle dont fait partie notre groupe d'Optique Quantique.

Un grand merci ensuite à tous les membres de l'équipe NPSC. Je commencerai tout d'abord par Jean-Michel Gérard qui, en plus de faire partie de mon jury, a été pour moi d'un grand soutien et une personne qui compte dans la vie d'un chercheur. Sa connaissance et sa maîtrise du sujet décrit dans cette thèse sont inestimables.

Je remercie aussi mes 2 "profs", Joël Cibert et Henri Mariette. Lors de discussions avec eux, j'ai beaucoup appris sur un sujet qui au départ m'était inconnu. J'ai eu beaucoup

de chance de pouvoir travailler avec eux. Je remercie en particulier Henri Mariette pour avoir corrigé une partie de ce manuscrit.

Je remercie ensuite les membres NPSC du LSP rebaptisé récemment Spectro (personnellement je préférais LSP...). Je remercie Lucien Besombes, M. Boîte Quantique, avec qui j'ai eu des discussions scientifiques très fructueuses. Je remercie David Ferrand, toujours disponible pour m'aider sur la manip mais aussi sur la physique du solide. En particulier, je le remercie d'avoir corrigé une partie de ce manuscrit. Je remercie Christoph Simon qui, en plus d'être un ami et le parrain de l'une de mes filles, est aussi un chercheur de grande qualité avec qui j'aime discuter de physique.

Je remercie les membres NPSC de la partie CEA, en premier lieu Régis André, chef épitaxieur hors pair avec qui j'ai énormément appris sur les matériaux et les techniques d'épithaxie. Je remercie Kuntheak Kheng avec qui j'ai beaucoup travaillé pendant plusieurs mois et je remercie enfin Thomas Aichele pour avoir brièvement aidé sur la manip avant de passer à l'épithaxie.

Je tiens à exprimer la chance que j'ai eu de travailler pendant plusieurs mois avec Jan Gaj, professeur de l'Université de Varsovie. Ce fut un honneur et une chance pour moi de collaborer avec quelqu'un d'une telle excellence scientifique.

Je n'oublie pas les thésards de NPSC, les épithaxieurs Frank Tinjod (à présent à Nice) et surtout Ivan-Christophe Robin (bientôt à Vancouver) avec qui j'ai travaillé en parallèle durant ces 3 années. Je remercie particulièrement Sebastian Moehl (à présent au Bureau des Brevets Européens de Munich) qui est venu m'apporter pendant plusieurs mois une aide inestimable au début de ce travail de thèse. Je remercie Philippe Renaud-Goud (aujourd'hui à Dresde) avec qui j'ai partagé le labo pendant plus d'un an. Je ne lui en veux pas trop pour m'avoir abandonné et pour avoir basculé du côté obscur de la recherche : dans le secteur industriel. Je remercie Maxime Richard (parti à Lausanne) avec qui j'ai partagé mon bureau pendant 2 ans. Nous avons eu des conversations scientifiques mais aussi non-scientifiques très stimulantes. Je remercie les autres thésards de NPSC : Jacek Kasprak, Yoan Léger et Stéphane Marcet. Tous les 3 d'excellents collègues de travail avec qui j'ai entretenu d'excellentes relations. Enfin, je ne peux pas oublier Grégory Sallen qui a pris ma succession sur la manip. Bonne chance à toi Grégory, j'ai fais ce que j'ai pu pour t'aider, à présent c'est à toi de jouer.

Un grand merci aux stagiaires de l'équipe NPSC, ceux qui ont travaillé directement avec moi : Jan Suffczynski (reparti à Varsovie pour une thèse), Gabriel Hétet (parti en Australie pour une thèse), Bernard Piechal (reparti aussi à Varsovie pour une thèse) et ceux avec qui j'ai travaillé indirectement : Horst Vissel (reparti à Karlsruhe pour un Diplom-Arbeit) et Markus Koch (reparti à Heidelberg pour un Diplom-Arbeit).

Je remercie les autres thésards de l'étage : Nicolas Chevalier (au CEA-LETI), Aurélien Drezet (à Graz), Michael Nasse (à l'Université du Wisconsin), Frederico Martins, Yannick Sonnefraud et Pascale Vérant.

Un grand merci également au support technique de Spectro : Michael Betton, Michel Bouriau, Samir Kassi, Alain Ubelmann et en particulier Jean-François Motte dont l'aide a été très précieuse durant ces 3 années.

Je ne peux pas oublier de remercier les 3 "vieux", vieux non par l'âge mais par la sagesse, avec qui j'ai eu le privilège de travailler durant ces 3 années. J'ai éprouvé un profond respect pour ces chercheurs.

Tout d'abord je remercie Jean-Claude Vial qui m'a hébergé dans son labo pour les premières manip tout au début et dont j'ai eu la chance de supporter l'humeur, le caractère, l'insolence mais surtout le génie expérimental.

Je remercie ensuite Pierre Edel, enseignant dans l'âme. Sa rigueur intellectuelle et scientifique sont impeccables et j'ai eu de la chance de travailler avec lui. Je le remercie tout particulièrement pour avoir lu et corrigé mon manuscrit de thèse si consciencieusement.

Enfin, l'émotion me gagne en écrivant ces lignes, je remercie Robert Romestain. Quel homme et quel malheur ! Son décès accidentel fut pour moi un choc et créa un vide. Je ne peux pas décrire assez bien les qualités de ce personnage et de ce chercheur d'exception. Je suis pleinement conscient de la chance que j'ai eu de côtoyer et de travailler avec Robert. Des rencontres comme celles-ci, cela n'arrive pas souvent dans une vie...

Enfin, je ne remercierai jamais assez Fabrice Donatini qui a été constamment à mes côtés durant ces trois années et le plus souvent dans les moments difficiles, là où l'on apprécie vraiment d'être aidé. Merci Fabrice.

Je termine en remerciant ma famille, mes grands-parents, mes parents, mes filles Brenna, Caitlin et Gisèle et surtout ma femme Sharon que je remercie infiniment d'avoir été à mes côtés dans les moments de doute, les moments difficiles où l'on veut tout arrêter. Elle a toujours été là pour me dire de ne pas abandonner.

"Sans la liberté de blâmer, il n'est point d'éloge flatteur".

Pierre-Augustin Caron de Beaumarchais.

"For a successful technology, reality must take precedence over public relations, for Nature cannot be fooled".

Richard P. Feynman.

"There are two possible outcomes : if the result confirms the hypothesis, then you've made a measurement. If the result is contrary to the hypothesis, then you've made a discovery."

Enrico Fermi.

*Je dédie cette thèse à tout ceux qui sont absents,
mon grand-père Jean, Jon, Robert, mon grand-père Léon et surtout
mon père Christian,
qui aurait été fier de ce manuscrit.*

*Je la dédie aussi à ceux qui m'entourent,
ma mère Evelyne, mes filles Brenna, Caitlin et Gisèle et bien sûr,
ma femme Sharon.*

Table des matières

Chapitre 1 Préambule	1
1.1 L'Informatique à l'Orée d'un Bouleversement ?	2
1.1.1 Loi de Moore et Limites Physiques	2
1.1.2 Feynman : Père Spirituel de l'Ordinateur Quantique	3
1.1.3 Algorithmes Quantiques et Qubit	3
1.2 L'Ordinateur Quantique : l'Arlésienne ?	6
1.2.1 Genèse de l'Ordinateur Quantique	6
1.2.2 Critères de DiVincenzo et 'Carte Routière' de l'Ordinateur Quantique	11
1.3 Les Boîtes Quantiques par la Voie Photonique	13
Bibliographie	15
Chapitre 2 Photons Uniques Indiscernables	19
2.1 Théorie Quantique de la Lumière et Fonction de Corrélacion dans une "Co- quille de Noix"	20
2.1.1 Quantification du Champ Électromagnétique	20
2.1.2 Comptons les Tous	23
2.1.3 Fonctions de Corrélacion du Champ Électromagnétique	25
2.1.4 Loi Poissonnienne du Laser	29
2.2 Zoologie des Sources de Photons Uniques	32
2.2.1 Atomes et Ions	32
2.2.2 Photons Annoncés	34
2.2.3 Molécules	36
2.2.4 Nanocristaux	37
2.2.5 Centres Colorés	38
2.2.6 Boîtes Quantiques Epitaxiées Auto-Assemblés	39
2.3 Indiscernabilité de 2 Photons	39

2.3.1	Approche Simpliste	39
2.3.2	Cohérence et Temps de Vie	40
2.3.3	Approche Réaliste	44
2.3.4	Effet Hong-Ou-Mandel	45
Bibliographie		49
Chapitre 3 Boîtes Quantiques Semiconductrices		55
3.1	Physique des Semiconducteurs sur le Dos d'une Enveloppe	56
3.1.1	Structure de Bandes-Masse Effective-Trous	56
3.1.2	Excitation Élémentaire : Exciton	59
3.1.3	Règles de Sélection Optique	60
3.2	Boîtes - Ilots - Points Quantiques	61
3.2.1	Croissance des Boîtes	61
3.2.2	Confinement des Porteurs	63
3.3	Entrons dans les Détails	68
3.3.1	Structure Fine - Dégénérescence de l'Exciton	68
3.3.2	Mélange de Bandes et Excitons Noirs	71
3.3.3	Biexciton et Enchevêtrement en Polarisation	72
3.3.4	Exciton Chargé sous Champ Magnétique	73
3.4	Différences de Matériaux : II-VI contre III-V	76
3.4.1	Différence de Confinement	76
3.4.2	Différence de Force d'Oscillateur	77
3.4.3	Différence de Longueurs d'Ondes d'Emission	79
3.4.4	Différence de Densités	80
Bibliographie		83
Chapitre 4 Montage Expérimental		85
4.1	Cryogénie	86
4.1.1	Cryostat à Doigt Froid	86
4.1.2	Cryostat à Bain d'Hélium	87
4.2	Systèmes Lasers	89
4.2.1	Laser Argon Continu	89
4.2.2	Laser Titane-Saphir Impulsionnel	90
4.2.3	Doublage de Fréquence	91

4.2.4	Autres lasers	93
4.3	Microscopie et Microphotoluminescence	93
4.3.1	Rudiments de Microscopie	93
4.3.2	Sélection Spatiale pour Microphotoluminescence	96
4.3.3	Lentille à Immersion Solide	97
4.3.4	Imagerie de la Surface	100
4.4	Spectroscopie et Détection	102
4.4.1	Spectromètres et Caméras CCD	102
4.4.2	Détecteurs de Photons Uniques	103
4.5	Montages TCSPC et Hanbury-Brown Twiss	108
4.5.1	Compteur de Photons Uniques à Corrélations Temporelles	108
4.5.2	Montage de Hanbury-Brown Twiss et Fonction de Corrélations	109
4.6	Mesure de la Cohérence Optique	110
4.6.1	Interféromètre de Michelson	110
4.6.2	Performances Obtenues	111
4.7	Miscellanés	113
4.7.1	Filtrage Supplémentaire	113
4.7.2	Transmission et Taux de Collection	114
4.7.3	Survol du Montage Final	115

Bibliographie **117**

Chapitre 5 Autocorrélation de Photons Uniques et Corrélations Croisées de Paires de Photons **119**

5.1	Modélisation des Corrélations Temporelles	120
5.1.1	Equivalence : Population d'un Niveau-Statistique de Photons	120
5.1.2	Modèle d'un Système à Deux Niveaux	122
5.1.3	Modèle de Transitions Multiexcitoniques	124
5.1.4	Application aux Corrélations Croisées	128
5.2	Confrontation avec les Résultats	130
5.2.1	Courbes de Saturation et de Déclin des Niveaux	130
5.2.2	Taux de Comptage et Prise en Compte du Bruit	133
5.2.3	Autocorrélation de la Transition Excitonique	135
5.2.4	Corrélations Croisées Exciton-Biexciton	138
5.3	Amélioration des Modèles	141

5.3.1	Présence de l'Exciton Noir	141
5.3.2	Piégeages Profonds	144
5.4	Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre	146
Bibliographie		149
Chapitre 6 Stratégies d'Excitation et Cohérence		151
6.1	Importance de l'Excitation sur la Cohérence	152
6.1.1	Principe de l'Excitation Résonnante	152
6.1.2	Excitations Quasi-Résonnantes d'une Boîte Quantique	153
6.1.3	Conséquences sur la Cohérence	155
6.1.4	Mesures de Cohérence en Fonction de la Longueur d'Onde	158
6.2	Excitation Résonnante à 2 Photons du Biexciton	162
6.2.1	Création de l'Exciton et du Biexciton simultanément	162
6.2.2	Résultats sur la Cohérence	164
6.3	Excitation à 2 Photons Infrarouges	167
6.3.1	Description de l'Absorption à 2 Photons de l'Exciton	167
6.3.2	Principe du Pompage Optique sur Exciton Chargé	168
6.3.3	Premiers Résultats sur Boîtes Quantiques Uniques	169
6.3.4	Difficultés Rencontrées	177
6.4	Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre	179
Bibliographie		181
Chapitre 7 Conclusions et Perspectives		183
7.1	Boîtes Quantiques II-VI en Microcavités	184
7.1.1	Nécessité de l'Effet Purcell	184
7.1.2	Premiers Résultats	186
7.2	Perspectives d'Expériences	190
7.2.1	Améliorations Techniques	190
7.2.2	Effet Hong-Ou-Mandel avec des Boîtes Quantiques II-VI	191
7.2.3	Protocole de Génération d'Intrication en Temps-Energie	193
7.3	Conclusion Générale	193
Bibliographie		197

Table des figures

1.1	Différentes représentations d'un qubit selon une recherche Google sur internet.	5
1.2	Schéma du montage expérimental théorique de Steane pour construire un ordinateur quantique à base de 13000 ions piégés dans un piège quadrupolaire, d'après la référence [17].	7
1.3	Schéma du montage expérimental théorique de Kane d'après la référence [31].	10
1.4	Tableau récapitulatif publié par l'ARDA sur les différentes approches de l'ordinateur quantique et leur état d'avancement selon les critères de DiVincenzo.	12
2.1	Cube séparateur 50/50 et sa matrice équivalente.	24
2.2	Expérience des trous d'Young.	28
2.3	Expérience de corrélations de photons d'ordre 2 encore appelé montage de Hanbury-Brown et Twiss.	30
2.4	Schéma de l'expérience de dégroupements de photons par fluorescence résonante réalisé sur un jet dilué d'atomes de sodium, d'après [12].	33
2.5	a) Montage de l'expérience de corrélations de photons émis par un atome unique piégé par un piège dipolaire. b) Résultat de dégroupement de photons obtenu pour un tel système, d'après [18].	34
2.6	Expérience d'émission de photons uniques en pseudo-demande par stockage de photons de fluorescence paramétrique, d'après [22].	36
2.7	Représentation des temps caractéristiques de la décroissance exponentielle d'une transition radiative, soumise à des déphasages tous les T_2^* en moyenne.	43
2.8	Expérience de Hong-Ou-Mandel de coalescence de photons produits par fluorescence paramétrique. D'après [23].	45
2.9	a) Montage de l'expérience de Hong-Ou-Mandel réalisée avec une boîte quantique dans une microcavité. b) Résultats de la coalescence sur 3 BQs différentes. D'après [57].	47
3.1	a) Représentation de l'existence de bandes d'énergies dans un solide. Schématisation du passage de l'interaction de 2 atomes, avec formation d'une molécule, à N atomes, avec formation d'un réseau. b) Diagramme complet de bandes d'énergies de GaAs.	57
3.2	Déroulement d'une croissance par épitaxie par jet moléculaire de boîtes de CdTe sur substrat de ZnTe, puis encapsulées par ZnTe à nouveau.	62
3.3	Image de microscopie à force atomique (AFM) d'un plan de boîtes quantiques auto-assemblées CdTe sur substrat ZnTe. D'après [2]	63
3.4	Représentation du confinement de l'électron et du trou dans une boîte quantique, avec formation d'un exciton par excitation laser.	64

3.5	a) Image STM d'un méso de 100 nm de côté contenant une seule boîte quantique InAs dans GaAs. b) Schéma de niveaux d'une BQ et photoluminescence d'un ensemble de boîtes. c) Spectre d'une boîte unique en fonction de la puissance d'excitation. d) Schéma de niveaux théoriques d'une boîte quantique selon un modèle de potentiel parabolique 2D avec prise en compte des interactions coulombiennes (d'après [3]).	67
3.6	Représentation énergétique de l'exciton (neutre) en a) et du trion (exciton chargé) en b).	68
3.7	a) Valeur δ_s du doublet de l'exciton d'une boîte CdTe trouvée sur notre montage. b) Idem que a) sur un montage plus résolvant et sur une boîte de CdSe. Montage emprunté à L. Besombes et D. Ferrand.	69
3.8	a) 4 Recombinaisons possibles de l'exciton vers le vide, composées de 2 radiatives et de 2 non-radiatives. b) Structure fine de l'exciton radiatif - Dégénérescence du niveau excitonique.	70
3.9	Evolution des niveaux d'énergies de l'exciton noir X_d et de l'exciton brillant X_b en fonction du champ magnétique B en configuration Faraday.	71
3.10	Diagramme d'énergie et de polarisation de la cascade biexcitonique dans le cas d'une boîte parfaitement isotrope, a) et anisotrope b).	74
3.11	a) Evolution d'une raie de trion X^- en fonction du champ magnétique sur une boîte de CdSe dans ZnSe. b) Idem que a) mais avec la présence d'un exciton neutre X sur le même spectre.	75
3.12	Ecart en énergie de l'exciton et du biexciton dans des BQs de CdTe a), et de CdSe, b).	76
3.13	a) Mesures de temps de vie de l'exciton radiatif dans CdTe et dans InAs. b) Mesures de temps de vie radiatifs d'un exciton dans CdTe et de son biexciton associé.	78
3.14	Spectre de boîtes quantiques CdSe aux basses longueurs d'ondes et de boîtes quantiques CdTe aux hautes longueurs d'ondes.	80
3.15	Différence de densité de boîtes quantiques de CdSe pour des ouvertures de 10 μm en a) et de 0.2 μm de côté en b).	81
4.1	a) Cryostat à flux d'hélium. b) Cryostat à bain d'hélium.	87
4.2	Gamme d'énergie d'émission des échantillons étudiés et possibilités d'excitation laser à notre disposition.	89
4.3	Spectre du laser en régime continu (courbe avec ronds pleins), en régime impulsionnel (courbe avec losanges pleins) et ajustement gaussien de cette dernière (courbe en traits pleins gris).	91
4.4	a) Dépendance avec la température de la longueur d'onde d'émission du laser doublé en fréquence. b) Acceptance en température du doublage d'une fréquence donnée.	92
4.5	Grandeurs pertinentes pour le calcul d'une ouverture numérique.	94
4.6	Schéma de l'empilement d'éléments piézoélectriques (de marque Attocube) servant à bouger l'échantillon au point focal de l'objectif de microscope.	95
4.7	Photographie de la queue de la canne insérée dans le cryostat avec aperçu de l'objectif de microscope ainsi que des éléments piézoélectriques Attocube montés les uns sur les autres et portant le porte-échantillon.	96
4.8	Image d'un masque d'aluminium déposé sur la surface d'un plan de boîtes quantiques. Image réalisée à l'aide d'un microscope électronique à balayage.	97
4.9	Schéma de principe d'une SIL de ZrO_2 , d'indice $n_{sil} = 2.16$ accolée à un échantillon de semiconducteur II-VI d'indice $n_s \approx 2.7$	99

4.10	Effet du gain en collection de la lumière avec et sans SIL. Les courbes représentent la saturation d'une raie excitonique.	99
4.11	Schéma du montage d'imagerie en lumière blanche de la surface d'un échantillon. MO signifiant objectif microscope.	101
4.12	Surface d'un échantillon masqué prise avec l'ensemble microscope+lentille+webcam. . .	101
4.13	Résolution spectrale du spectromètre Chromex de focale 50 cm. Cela correspond à la résolution spectrale ultime du montage.	103
4.14	a) Résolution temporelle ou gigue temporelle du meilleur photomultiplicateur seul utilisé. Mesure effectuée "à nue" i.e. sans aucun autre élément dispersif temporellement. b) Résolution temporelle du montage avec 2 photomultiplicateurs à galettes de microcanaux+spectromètres.	104
4.15	Représentation géométrique du retard temporel pris par un faisceau incident réfléchi par un réseau. La figure définit les paramètres pertinents pour le calcul de la différence de marche δ	105
4.16	Résolution temporelle du montage avec 2 photodiodes à avalanches+spectromètres. . .	107
4.17	a) Représentation d'un interféromètre de Michelson avec une entrée e_1 et 2 sorties s_1 et s_2 . Un bras est monté sur une vis à pas fins pour une grande excursion (grand retard t_L) et l'autre sur un piézoélectrique pour une faible excursion (petit retard t_l) et pour voir les franges d'interférences. b) Cliché photographique de l'interféromètre sur le montage.	111
4.18	a) Contraste du laser doublé en fréquence avec une longueur de cohérence trouvée de 452 μm . b) Plusieurs franges d'interférences du laser enregistrées en comptage de photons à la sortie du spectromètre. c) Etude de la stabilité mécanique du montage sur plusieurs millimètres. Mesures faites avec un laser argon de très grande longueur de cohérence (de l'ordre du mètre).	112
4.19	Montage de filtrage supplémentaire avec réseau et masque pour stopper la lumière laser non-désirée.	113
4.20	Photographie du montage final avec en a) la partie laser et en b) le reste de l'expérience.	116
5.1	Schéma d'un système à 2 niveaux avec un niveau fondamental f et un niveau excité e	121
5.2	a) Evolution de la population stationnaire du niveau excité en fonction de la puissance du laser incident r . Une durée de vie de $T_1 = 1/\Gamma = 250$ ps. b) Valeurs théoriques de la fonction $g^{(2)}(\zeta)$ pour 5 valeurs de r différentes, données en unité de Γ	123
5.3	Schéma d'un modèle en échelle de transitions multiexcitoniques.	125
5.4	a) Evolution des populations excitoniques n_{1-X} et biexcitoniques n_{2-X_2} en fonction de la puissance d'excitation r . b) Idem que a) en échelle log-log et avec une courbe de pente linéaire et une courbe de pente quadratique.	126
5.5	a) Allure de la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\zeta)$ pour la population excitonique n_1 d'une boîte quantique. Les 4 courbes représentent cette même fonction pour différents degrés de remplissage d'excitons dans la boîte : X_1 , X_2 , X_3 et X_4 . b) Idem que a) avec un gros plan au voisinage de $\zeta = 0$ dans le cas où seulement un et deux excitons sont considérés dans la boîte. Dans les 2 cas, on a pris $r = 0.175 \Gamma$. Les valeurs de Γ_1 et Γ_2 de la figure 5.4 ont été repris et Γ_3 et Γ_4 sont issus de [5].	127
5.6	Allure de la fonction de corrélations croisées $g_{12}^{(2)}(\zeta)$ pour les populations excitonique et biexcitonique d'une boîte quantique pour 5 puissances d'excitation laser r différentes.	129

5.7	Evolution du spectre d'un trou de 200 nm de côté en fonction de la puissance d'excitation laser. Identification d'un exciton et de son biexciton associé.	131
5.8	a) Dépendance en fonction de la puissance des populations excitonique et biexcitonique en échelle semi-logarithmique. b) Idem que a) en échelle log-log avec apparition d'un maximum de fluorescence dans les 2 cas.	132
5.9	Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe. n_c représente les événements coïncidents START/STOP et $g^{(2)}(\zeta)$ est la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 après normalisation. La courbe issue de l'ajustement sur le modèle présenté dans la partie 5.1.3 est aussi dessinée.	136
5.10	Idem que figure 5.9 mais sur une boîte quantique de CdSe dans ZnSe. n_c représente les événements coïncidents START/STOP et $g^{(2)}(\zeta)$ est la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 après normalisation.	137
5.11	Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe en régime impulsif.	138
5.12	Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe en régime continu.	139
5.13	Corrélations croisées biexciton-exciton en fonction de la polarisation des photons émis par la cascade. 4 cas de figures : $H(XX)V(X)$, $V(XX)V(X)$, $V(XX)H(X)$ et $H(XX)H(X)$	141
5.14	a) Schéma de niveaux de l'exciton seul avec ces 2 populations égales brillantes n_{Xb} et noires n_{Xd} . b) Même schéma que a) avec prise en compte du biexciton en plus.	142
5.15	a) Courbes issues des modèles donnés par la figure 5.14 avec un paramètre de saturation de $r = 0.65 \Gamma_{Xb}$. b) Superposition de la courbe issue du modèle donné sur la figure 5.14-b) (avec prise en compte de la résolution temporelle) avec le résultat expérimental obtenu.	143
5.16	Courbe de durée de vie d'une boîte quantique unique de CdTe. Comparaison des ajustements avec le résultat expérimental, voir texte.	145
6.1	Excitation de la photoluminescence d'une boîte quantique unique de $In_{0.6}Ga_{0.4}As$. La courbe en pointillés représente la raie sous excitation non-résonnante. D'après [3].	155
6.2	a) Influence de la température sur la largeur de raie Υ ($\equiv \Gamma$) [4]. b) Courbe de contraste typique en fonction du retard d'un bras de l'interféromètre avec composante courte due aux phonons acoustiques et composante longue due à la raie zéro-phonon [5]. Dans l'encart est représenté l'allure d'un spectre d'émission de boîte quantique avec une raie à zéro-phonon étroite sur un fond large dû aux phonons acoustiques.	157
6.3	a) Interférences d'une raie d'émission excitonique d'une boîte quantique unique de CdSe dans ZnSe. Laser d'excitation à 514.5 nm pour une émission à 517.2 nm. La courbe de lumière parasite est superposée à la courbe des interférences. b) Courbe de contraste de la même raie excitonique excitée à 457.8 nm. Un ajustement exponentiel donne une valeur de $T_2 = 4.13$ ps.	159
6.4	Influence de la longueur d'onde d'excitation d'une boîte quantique unique de CdSe dans ZnSe sur la largeur de raie d'émission excitonique.	161
6.5	Influence de la longueur d'onde d'excitation d'une boîte quantique unique de InGaAs sur la largeur de raie d'émission excitonique. La largeur de raie est normalisée à l'énergie d'émission de l'exciton. D'après [4].	161
6.6	Schéma d'un système à 2 niveaux avec un niveau fondamental f et un niveau excité e	163

6.7	La figure du haut présente le spectre d'une raie excitonique et de son biexciton associé en excitation non-résonnante. Le milieu de l'écart $X - X_2$ est représenté par une flèche signifiant quelle devrait être la longueur d'onde du laser d'excitation. la figure du bas présente le même spectre avec les 2 mêmes raies mais en excitation résonnante à 2 photons. La trace du laser est encore visible entre les 2 raies de la boîte quantique.	165
6.8	Evolution de l'intensité de l'exciton et du biexciton en fonction de la puissance laser d'excitation. La courbe en traits pleins représente une évolution purement quadratique. La courbe en traits pointillés représente une évolution purement linéaire.	166
6.9	Contraste de la raie biexcitonique d'une boîte quantique CdSe dans ZnSe en excitation résonnante à 2 photons.	166
6.10	Principe du pompage optique de spin de l'électron dans une boîte chargée naturellement à un électron.	170
6.11	Excitation à 2 photons infrarouges d'un échantillon de boîtes quantiques de CdSe dans ZnSe. La raie principale est le doublage direct des matériaux (plan de boîtes+substrat) et non un effet de résonance.	171
6.12	Divers spectres de fluorescence en excitation infrarouge à deux photons avec différentes concentrations de boîtes quantiques pour des mésas de tailles submicrométriques.	173
6.13	Comparaison du spectre d'émission d'un méso de côté de 200 nm en excitation à 457.8 nm et en excitation à 2 photons infrarouges à 1026.4 nm.	174
6.14	Evolution de l'intensité des boîtes quantiques d'une ouverture de 200 nm de côté en fonction de la puissance d'excitation infrarouge à 1036 nm	175
6.15	a) Courbe d'évolution de l'intensité du doublage du substrat dûe au laser en fonction de l'excitation laser. b)-c)-d) Courbes d'évolutions de quelques raies excitoniques en fonction de l'excitation laser.	175
6.16	Evolution du spectre de boîtes quantiques dans un méso de 200 nm de côté en fonction de la longueur d'onde d'excitation du laser.	177
6.17	Courbes d'évolutions de l'intensité d'une boîte quantique à 511.4 nm, 514.3 nm, 522.9 nm et 532.9 nm en fonction de la longueur d'onde d'excitation.	178
7.1	Schéma d'un micropilier dont les miroirs de Bragg sont faits de TiO ₂ /SiO ₂ avec insertion de boîtes quantiques CdSe/ZnSe au centre de la cavité formée. D'après [17].	186
7.2	a) Série de micropiliers de diamètre variables placés selon un schéma prédéfini. b) Image d'un micropilier de 0.9 μm de diamètre nominal, dont la structure est celle décrite par la figure 7.1.	187
7.3	a) Spectre d'un micropilier de 1.6 μm de diamètre pour une puissance P_0 et pour une puissance $50P_0$ b). c) A $50P_0$, autocorrélation effectué en 60 s.	189
7.4	Montage de coalescence de photons avec un Mach-Zender MZ1 pour le décalage des impulsions de pompe, avant la lame séparatrice excitation/fluorescence, et un Mach-Zender MZ2 sur la voie fluorescence pour recombiner les photons et obtenir l'effet Hong-Ou-Mandel [23].	192

Chapitre 1

Préambule

Sommaire

1.1	L'Informatique à l'Orée d'un Bouleversement ?	2
1.1.1	Loi de Moore et Limites Physiques	2
1.1.2	Feynman : Père Spirituel de l'Ordinateur Quantique	3
1.1.3	Algorithmes Quantiques et Qubit	3
1.2	L'Ordinateur Quantique : l'Arlésienne ?	6
1.2.1	Genèse de l'Ordinateur Quantique	6
1.2.2	Critères de DiVincenzo et 'Carte Routière' de l'Ordinateur Quantique	11
1.3	Les Boîtes Quantiques par la Voie Photonique	13

1.1 L'Informatique à l'Orée d'un Bouleversement ?

1.1.1 Loi de Moore et Limites Physiques

La période des 25 dernières années du 20^{ième} siècle est définitivement l'âge d'or de l'informatique, plus particulièrement l'âge d'or de l'informatique à grande vitesse et à grande échelle. Les verrous technologiques de vitesse de calcul et de capacité de mémoire ont été levés un par un et ont permis la naissance d'ordinateurs puissants, rapides, sûrs et à grandes capacités mémoire. L'ordinateur est devenu accessible à un large public pour utilisation de tous les jours (écrire un manuscrit de thèse par exemple), comme pour l'utilisation bien spécifique dans le cadre de calcul très complexe. La notion d'ordinateur personnel ou PC (pour **P**ersonal **C**omputer) est née dans les années 80 et s'est banalisée de nos jours. On est bien loin du premier ordinateur ENIAC (pour **E**lectronic **N**umerical **I**ntegrator and **C**omputer) construit en 1946 à l'Université de Pennsylvanie. Ce calculateur était composé de 19000 tubes à vide, il pesait 30 tonnes, occupait une surface de 72 m^2 (la taille d'un appartement de 3 pièces !) et consommait 140 kW . Sa vitesse d'horloge était de 100 KHz et sa vitesse d'environ 330 multiplications par seconde. Depuis ce calculateur géant -par la taille- le transistor a été inventé et est venu révolutionner l'électronique de l'époque à nos jours. Depuis cette naissance, ce composant a été voué à la miniaturisation extrême et n'a cessé de se développer.

En 1965, Gordon Moore, alors directeur des laboratoires de recherche et développement de la société Fairchild Semiconductor, publie un article dans la revue **Electronics** [1]. Dans cet article, Moore suggère ce qui deviendra la fameuse 'Loi de Moore'. Basée sur une tendance statistique, Moore observa que le nombre de transistors de circuits intégrés doublait tout les 18 mois. Cette loi s'est plus ou moins vérifiée jusqu'à nos jours (même si de nos jours, l'échelle est plutôt 24 mois) et les processeurs actuels d'ordinateurs sont fabriqués avec des tailles de transistors de l'ordre de 60 à 90 *nm*. De fait, la technologie à 45 *nm* est actuellement à l'étude dans les laboratoires de Motorola/STMicroelectronics du site de Crolles par exemple. En conséquence, ils deviennent si petits que la recherche se développe de nos jours vers la nanotechnologie et la nanophysique. Ce domaine représente bien entendu l'étude de systèmes complexes dont la taille est submicrométrique. Toutefois, il apparaît aussi qu'à de telles dimensions la mécanique quantique va commencer à prendre une place de plus en plus importante et ses effets vont également se faire sentir de plus en plus. En pratique, cela veut dire que les couches d'oxydes et d'isolants doivent être tellement fines que l'on s'approche de la valeur où les électrons ont une probabilité non négligeable de traverser ces couches par effet tunnel. Ceci aurait évidemment pour conséquence de diminuer le rendement (puisque l'on augmenterait les erreurs) mais aussi d'augmenter la chaleur générée par tout ces transistors.

Il y a à l'heure actuelle 2 types de technologies : la technologie haut-bas (**top-down** en anglais) et la technologie bas-haut (**bottom-up** en anglais). La première est celle utilisée par les fabricants de circuits intégrés qui consiste à miniaturiser le plus possible (avec les conséquences que cela implique comme on vient de le voir). La deuxième voie empruntée par certains chercheurs est de partir de systèmes très petits (au niveau atomique ou

moléculaire donc à un niveau dimensionnel régit par la physique quantique) et de grandir en taille tout en contrôlant ces systèmes au fur et à mesure du grandissement. A la fin, bien évidemment, il doit y avoir un endroit où les 2 approches doivent se rejoindre et s'accorder. Cette frontière n'a pas encore été atteinte.

1.1.2 Feynman : Père Spirituel de l'Ordinateur Quantique

Dans le même temps que la technologie de l'électronique se rapproche dangereusement de ses limites dimensionnelles ultimes (avant de rencontrer des problèmes dûs à la mécanique quantique), les années 80 ont vu l'apparition d'une idée qui s'avérera être extrêmement prolifique pour les 20 années à suivre et qui, de plus, répondrait en partie aux problèmes de la microélectronique devenu depuis peu de la nanoélectronique.

Vers la fin de sa vie, le très fameux Richard Feynman, professeur de Physique Théorique à Caltech, a laissé en testament une réflexion ou plutôt une interrogation qui servira de tremplin à ce que l'on connaît aujourd'hui sous le nom générique d'information quantique. En 1981, Feynman donne un séminaire à la *Conference on Physics of Computation* au MIT à Cambridge [2]. Dans cet article intitulé : "Simuler la physique avec des ordinateurs", le prix Nobel de Physique 1965, suggère pour la première fois que l'on pourrait construire un ordinateur qui serait régi par les lois de la mécanique quantique. De cette façon, on pourrait très facilement simuler des systèmes quantiques qui sont insolubles autrement car le temps de calcul serait trop long. Dans cet article, le visionnaire Feynman jette les bases de ce que l'on appellera par la suite l'ordinateur quantique. On notera pour l'anecdote que cet article ne possède aucune référence bibliographique comme si véritablement le livre de l'histoire de l'information quantique s'était ouvert avec cet article.

Il est intéressant de rappeler que Feynman est aussi connu comme étant le père de la nanotechnologie. En effet, en décembre 1959, il donne un séminaire à Caltech qu'il appelle *There is plenty of room at the bottom* ("Il y a plein de place dans le fond"). Durant ce séminaire il pose la question de savoir ce qui se passerait si l'on pouvait coder de l'information au plus petit niveau possible par l'homme, sans l'utilisation de gros moyens de physique des particules, c'est à dire l'atome. La nanophysique (peut-être même 'picophysique') est née de cette idée qu'il n'y a aucune limite physique fondamentale à utiliser l'atome comme le porteur ultime de l'information (un bit donc). Bien entendu, nous verrons que l'ordinateur quantique est inconcevable sans le contrôle du bit élémentaire et que pour cela nous devons nous intéresser à des systèmes purement quantique et donc dans la plupart des cas à des systèmes de taille nanométrique ou en tout cas submicrométrique.

1.1.3 Algorithmes Quantiques et Qubit

Très vite, après le pavé dans la mare de Feynman, l'idée de l'ordinateur quantique universel fait son chemin et la première ébauche d'algorithme quantique fait son apparition en 1985 avec David Deutsch de l'Université d'Oxford [3]. Dans cet article, l'auteur fait en fait allusion à l'ordinateur quantique comme étant un moyen de tester la théorie des mondes parallèles de Hugh Everett (*Many World Theory*) [4]. Il chercha tout de même à établir l'existence d'une porte logique quantique universelle tout comme Church et Turing

avant lui montrèrent qu'il existe une porte logique "classique" universelle. Cette ébauche de travail d'algorithmique quantique sera concrétisé en 1992 dans un article que Deutsch publie avec Richard Jozsa dans lequel les auteurs expriment clairement la possibilité de résoudre certains problèmes beaucoup plus rapidement avec un ordinateur quantique [5]. La véritable révolution viendra en 1994 de la preuve de Peter Shor des Bell Labs du gain polynômial d'un algorithme quantique contre un gain exponentiel (donc beaucoup plus long) d'un algorithme classique [6]. Avec Shor, l'intérêt de construire et d'utiliser un ordinateur quantique devenait évident et prenait de l'importance au sein de la communauté scientifique. Pratiquement tout de suite après cette découverte, un autre algorithme basé sur la mécanique quantique fut trouvé par Lov Grover [7, 8]. Ce chercheur, des Bell Labs également, prouva que la recherche d'un élément dans une base de données peut être grandement accélérée si l'on utilise un algorithme quantique et non classique.

Depuis, beaucoup d'autres articles et propositions théoriques ont fleuri dans la littérature mais aucune proposition de l'importance de celle de Shor ou Grover n'a été faite depuis ces travaux pionniers sur l'algorithmique quantique. La tendance actuelle serait donc plutôt de voir l'ordinateur quantique comme étant un outil de laboratoire pour étudier la mécanique quantique plutôt que quelque chose qui va prendre le dessus sur l'ordinateur que l'on connaît de nos jours. Un article récent de chimistes de l'Université de Berkeley démontre qu'un ordinateur quantique serait plutôt plus rapide qu'un ordinateur classique pour calculer des niveaux d'énergies de molécules relativement complexes [9] et cela avec seulement 30 à 100 qubits nécessaires. Cela serait finalement un retour aux sources de la vision de l'ordinateur quantique qu'avait Feynman il y a plus de 20 ans en arrière.

On notera que le terme "Qubit" pour bit quantique n'a été introduit qu'en 1993. Historiquement, il est attribué à Benjamin Schumacher lors du symposium Rank Prize intitulé "Quantum Communication and Cryptography" qui se déroula à Broadway en Grande-Bretagne. Depuis ce terme s'est généralisé dans toute la communauté de l'information quantique.

Utilisant un ordinateur classique, on peut s'amuser à rechercher la signification de 'qubit' sur Wikipédia sur internet. En voici leur définition : "Un qubit est une unité de l'information quantique. Cette information est décrite par un système quantique à 2 niveaux. Les états de bases sont habituellement représentés par $|0\rangle$ et par $|1\rangle$. Un état de qubit pur est une superposition linéaire quantique de ces deux états.". A cette définition, on ajoutera que par superposition linéaire quantique, on entend bien évidemment superposition cohérente de ces deux états. D'après cette définition (qui est en fait une reprise de la définition d'un bit quantique de Michael Nielsen et Isaac Chuang d'après la référence [10] et qui fait consensus), on peut se représenter un qubit $|\psi\rangle$ comme étant :

$$|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle \tag{1.1}$$

avec $|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1$. La figure 1.1 présente les différentes représentations d'un bit quantique que l'on peut trouver sur internet en effectuant une recherche sur Google.

Il apparaît que qubit est donc plus qu'un simple bit classique. Un qubit, avant une

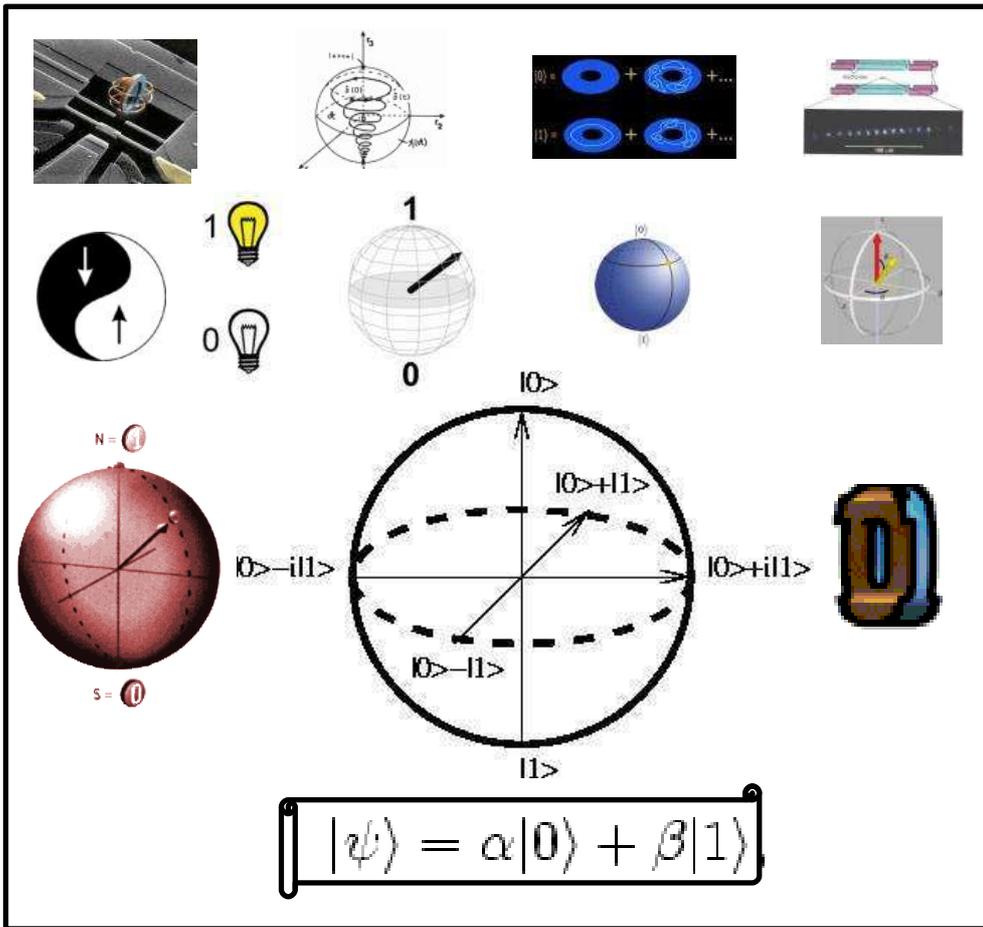


FIG. 1.1 – Différentes représentations d'un qubit selon une recherche Google sur internet.

mesure, possède des probabilités de donner 0 ou 1 qui sont continues (cela dépend des valeurs de α et β) alors qu'un bit classique ne possède que 2 probabilités de sorties puisque dans ce cas les coefficients α et β ne peuvent prendre que 2 valeurs 0 ou 1. Cette différence entre bit classique et bit quantique est déjà significative mais les différences sont encore plus grandes lorsque l'on étudie la combinaison de 2 qubits pouvant chacun prendre les valeurs $|0\rangle$ ou $|1\rangle$. On a alors :

$$|\psi\rangle = \alpha_{00}|00\rangle + \alpha_{10}|10\rangle + \alpha_{01}|01\rangle + \alpha_{11}|11\rangle \quad (1.2)$$

Pour les initiés, un état à 2 qubits particulièrement important est le cas où $\alpha_{00} = \alpha_{11} = 0$. L'état $|\psi\rangle$ qui en découle est alors donné par :

$$|\psi\rangle = \alpha_{01}|01\rangle + \alpha_{10}|10\rangle \quad (1.3)$$

Cet état quantique est un état enchevêtré ou intriqué. Il s'agit d'un système unique constitué de 2 entités, 2 particules bien distinctes. On parle d'intrication dans le sens où si l'on sépare spatialement ces 2 particules, la corrélation de la mesure entre l'un et l'autre est totale. L'état enchevêtré (1.3) est un état non séparable. En effet, si une des particules

constituant le système est mesuré dans l'état $|0\rangle$, alors l'autre sera dans l'état $|1\rangle$ à coup sûr (sauf erreur sur la mesure). Inversement dans le cas où l'on mesure $|1\rangle$, on sera sûr de mesurer $|0\rangle$ pour l'autre entité du système.

Cet état quantique fortement corrélé est particulièrement important dans la physique de l'information quantique et notamment dans la recherche d'algorithme. Cet état est aussi au cœur de la plupart des protocoles de communication quantique à grande distance ou pour le transfert d'information d'un système à un autre (disons entre un photon et un atome ou entre un photon et un autre photon). Cet état est un des états de Bell ou encore appelé un état EPR pour Einstein Podolski Rosen d'après les 3 auteurs qui ont en premier mis au jour les difficultés rencontrées à considérer cet état en mécanique quantique [11]. Les difficultés étant que la corrélation totale entre les 2 sous-systèmes du système complet violent le principe de localité, chose qui gênait beaucoup Einstein. Nous reviendrons plus tard au cours de cette thèse sur la notion d'enchevêtrement au chapitre 7 où nous verrons comment générer de l'enchevêtrement à l'aide de boîtes quantiques.

1.2 L'Ordinateur Quantique : l'Arlésienne ?

1.2.1 Genèse de l'Ordinateur Quantique

L'Ion Piégé comme Qubit Modèle

Même si les contributions de Shor et Grover se sont avérées déterminantes pour l'avenir de l'information quantique, jusqu'en 1995, le flou était total pour ce qui était d'une quelconque implémentation expérimentale. Personne n'avait la moindre idée de ce qu'il fallait faire, de ce qu'il fallait chercher et par où commencer.

En 1995, un article très important par Ignacio Cirac et Peter Zoller de l'université d'Innsbruck montrera la voie aux expérimentateurs [12]. Cet article, pourtant théorique, traitait de la possibilité de réaliser une porte logique quantique avec des ions piégés dans un piège électrique quadrupolaire. Ce système physique possède la particularité d'être fortement découplé du reste de l'univers et donc de conserver les effets cohérents que l'on pourrait créer par exemple par une excitation laser. Dans cet article, les auteurs proposent d'utiliser naturellement une transition interne à 2 niveaux d'un ion et de coupler 2, 3, n ions ensemble grâce à la quantification du mouvement collectif de l'ensemble de la chaîne d'ions formés. Pratiquement dans la foulée, la même année, le groupe de Dave Wineland, à Boulder dans le Colorado, implémente la porte logique quantique "contrôle-non" (Controlled-NOT ou C-NOT) de Cirac et Zoller à l'aide d'ions piégés de Be^+ [13]. En 2003, [14, 15] le groupe de Wineland à nouveau ainsi que le pendant européen animé par Rainer Blatt à Innsbruck démontrent des portes logiques à 2 ions séparés spatialement dans le piège. Il est certain que la voie du qubit ion piégé est probablement celle qui est la plus avancée, la plus sûre et la plus robuste aux attaques décohérentes de l'environnement. Depuis des chercheurs se sont même intéressés au problème de construire un ordinateur complet à l'aide d'ions piégés et donc à grande échelle [16].

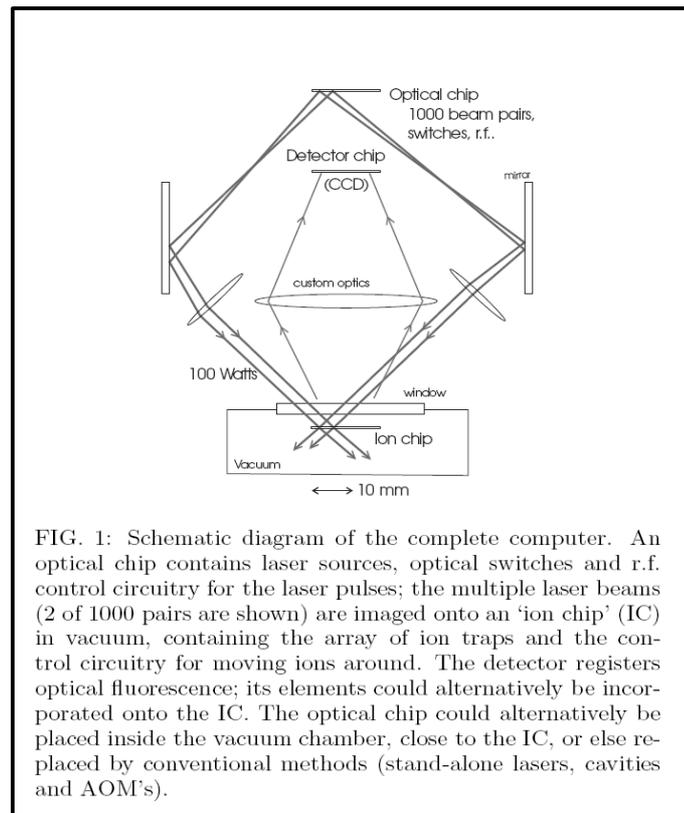


FIG. 1: Schematic diagram of the complete computer. An optical chip contains laser sources, optical switches and r.f. control circuitry for the laser pulses; the multiple laser beams (2 of 1000 pairs are shown) are imaged onto an 'ion chip' (IC) in vacuum, containing the array of ion traps and the control circuitry for moving ions around. The detector registers optical fluorescence; its elements could alternatively be incorporated onto the IC. The optical chip could alternatively be placed inside the vacuum chamber, close to the IC, or else replaced by conventional methods (stand-alone lasers, cavities and AOM's).

FIG. 1.2 – Schéma du montage expérimental théorique de Steane pour construire un ordinateur quantique à base de 13000 ions piégés dans un piège quadrupolaire, d'après la référence [17].

On notera pour être complet sur cette partie qu'un chercheur de l'université d'Oxford Andrew Steane qui se trouve être un spécialiste du calcul quantique et de la physique des ions piégés s'est amusé à considérer ce qu'il faudrait faire pour avoir un ordinateur assez puissant (dans le sens où il permettrait des calculs plus pertinents que la factorisation de 15) de 300 bits et qui puisse effectuer 10^9 opérations par seconde [17]. La Fig 1.2 montre le schéma expérimental imaginé qui consisterait à piéger 13000 ions sur une puce de $20 \mu m$ contenant 160000 électrodes et avec 1000 paires de faisceaux lasers pour pouvoir manipuler les états hyperfins des ions nécessaires pour effectuer des opérations et pour lire le résultat final. Bien sur, cela paraît impossible à faire, toutefois, on voit bien sur cet exemple que sur le principe, l'ordinateur quantique dans certains systèmes n'est qu'une question de progrès technologique.

La RMN et l'Algorithme Quantique

A la suite de Cirac et Zoller, 2 groupes pratiquement simultanément, et tous les 2 du MIT de Cambridge, proposent à leur tour de réaliser un ordinateur ou du moins d'effectuer des calculs quantiques mais cette fois-ci en utilisant les techniques de résonance magnétique nucléaire (RMN ou NMR en anglais) pour contrôler et étudier des qubits [18, 19]. Dans ce cas, les qubits sont des spins nucléaires de molécules contrôlés par des impulsions

multiples micro-ondes résonnantes. A nouveau, pratiquement juste après la proposition théorique, 2 groupes, l'un à IBM Californie et de l'université de Stanford [20], l'autre à Oxford [21], réalisent l'algorithme quantique de Deutsch-Josza. Le groupe du tandem IBM-Stanford mené par Chuang (à l'origine de la proposition théorique d'utiliser la RMN) va même réussir à réaliser l'algorithme de Shor et à factoriser le chiffre $15 = 5 \times 3$ à l'aide de 7 qubits (spins $1/2$ de molécules) quelques années plus tard en 2001 [22]. Cela porte évidemment à sourire de pouvoir factoriser le chiffre 15 seulement mais bien entendu, l'idée derrière ce résultat était de démontrer sur le principe la faisabilité d'une telle expérience. Après les ions piégés, les expériences de RMN sont certainement les plus avancées dans le domaine. Elles font toutefois faces à un problème majeur qui est l'impossibilité de contrôler un qubit individuellement. Nous reviendrons sur ce point dans la partie suivante avec un récapitulatif des différents candidats à l'ordinateur quantique.

La Photonique Toujours Présente

L'autre domaine très avancé, dans lequel des preuves théoriques et expérimentales de la possibilité de construire un ordinateur quantique ont été apportées, est la photonique : le photon est le qubit et son état de polarisation (par exemple linéaire horizontal ou linéaire vertical) est porteur de l'information. L'expérience de Bouwmeester et al. sur la démonstration expérimentale de la téléportation quantique en 1997 [53] puis celle de transfert d'enchevêtrement entre photons qui n'ont jamais interagi auparavant [54] sont certainement des contributions déterminantes pour la quête de l'ordinateur même si à l'époque il n'était pas question de calcul quantique ou de réalisation de portes logiques.

Dans ce domaine, la révolution est venue du premier article du 21^{ème} siècle de la revue Nature, donc en 2001. En effet, Emmanuel Knill, Raymond Laflamme et Gerald Milburn ont proposé dans cet article la réalisation d'un ordinateur quantique tout optique et cela en utilisant de l'optique de base dite linéaire [24]. Il n'y a alors pas besoin de créer des non-linéarités optiques qui compliquent toujours les expériences et qui ne sont pas toujours efficaces. Les seuls besoins sont une source de photons uniques indiscernables à la demande, (l'on reviendra en détails sur la définition d'un tel système dans le chapitre 2), et des détecteurs de photons qui puissent déterminer le nombre de photons. Il est apparu alors que l'ordinateur quantique tout optique était réalisable (contrairement à ce qui se pensait à l'époque) et que finalement tout se résumait à des progrès technologiques à effectuer plutôt qu'une limitation physique. Signalons que par la suite, Franson et al. ont développé l'idée originale de KLM (pour Knill, Laflamme et Milburn) en essayant de simplifier un peu le schéma extrêmement complexe de départ [26]. Expérimentalement, ces protocoles ont été prouvés très rapidement par différents groupes dans le monde. En 2003, un groupe australien [27] et un groupe du Maryland [28] (celui de Franson) démontrèrent pour la première fois une porte quantique contrôle-NON tout optique. En 2004 puis en 2005 [29, 30], le groupe de Zeilinger (à l'origine de l'expérience de téléportation quantique) à Vienne réussit à implémenter l'algorithme de Grover en ne faisant appel qu'à des photons uniques et de l'optique linéaire (i.e. en utilisant des miroirs, lentilles, cubes séparateurs et autres lames biréfringentes). Toutefois, il faut souligner que toutes ces expériences n'utilisent pas véritablement de sources de photons uniques mais des photons issus de demi-paires de photons créées par fluorescence paramétrique (effet d'optique non-

linéaire qui consiste à scinder en deux photons de plus basse énergie un photon de pompe de plus haute énergie). Sur le principe, l'expérience KLM a été partiellement réalisée mais dans les faits pas totalement puisque la création des photons au départ fait toujours appel à l'optique non-linéaire. A l'heure actuelle, même si cette manière de créer des photons uniques est toujours la plus répandue, elle reste limitée au processus non-linéaire même, qui reste très inefficace. Nous reviendrons plus en détails sur les sources de photons uniques au chapitre 2.

Les Promesses de la Matière Condensée

Pour terminer, il faut certainement parler des propositions d'ordinateur quantique dans les solides. Ces propositions, contrairement aux autres précédemment citées, sont pour le moment loin d'être applicables expérimentalement. Toutefois, elles ont le mérite d'exister et surtout d'ouvrir la voie vers la physique du solide. Autant il serait difficile de croire que le premier ordinateur quantique serait, comme l'a décrit A. Steane, fait d'une chaîne de 13000 ions, éclairés par des centaines de faisceaux lasers, ou encore qu'il serait fait d'un liquide rempli de molécules appropriées dans une fiole et tout cela passé sous champ magnétique et soumis à des ondes micro-ondes, autant un circuit imprimé dans lequel, par des méthodes très sophistiquées de nanolithographie, on aurait gravé un circuit de logique quantique paraît beaucoup plus plausible à long terme. C'est probablement ce qui a poussé Bruce Kane en 1998, alors à l'Université du Maryland, à proposer un ordinateur quantique à base de défauts donneurs de phosphore dans une matrice de silicium [31]. En s'arrangeant pour coincer chaque donneur de phosphore entre des électrodes, tout cela placé sous fort champ magnétique et à des températures de l'ordre de quelques mK , Kane montre que des portes logiques à 2 qubits pourraient se faire via les électrodes et donc qu'un ordinateur serait concevable. La figure 1.3 présente le schéma du montage présenté par Kane lui-même.

Cette proposition, très difficile expérimentalement, est un véritable challenge pour les physiciens mais très prometteuse. Un réel effort est à présent engagé en Australie sous l'impulsion de Roger Clark et tout est mis en place pour pouvoir réaliser une telle prouesse scientifique [32].

L'autre voie envisagée dans la matière condensée est celle de la manipulation de spins électroniques dans des boîtes quantiques semiconductrices avec des variantes avec ou sans cavités optiques [33, 34]. Cette option est encore plus difficile à concrétiser et il n'est pas clair que la technologie puisse permettre jamais de réaliser les schémas proposés dans ces articles. Toutefois, comme on le verra plus en détails dans le chapitre 2, les boîtes quantiques restent très prometteuses en tant que sources de photons uniques indiscernables. Notre approche est donc d'utiliser cette qualité et de les coupler à un circuit optique type KLM pour pouvoir réaliser un ordinateur quantique qui ne sera alors plus limité par le nombre de qubits ni bien sûr par la 'qualité' des opérations effectuées.

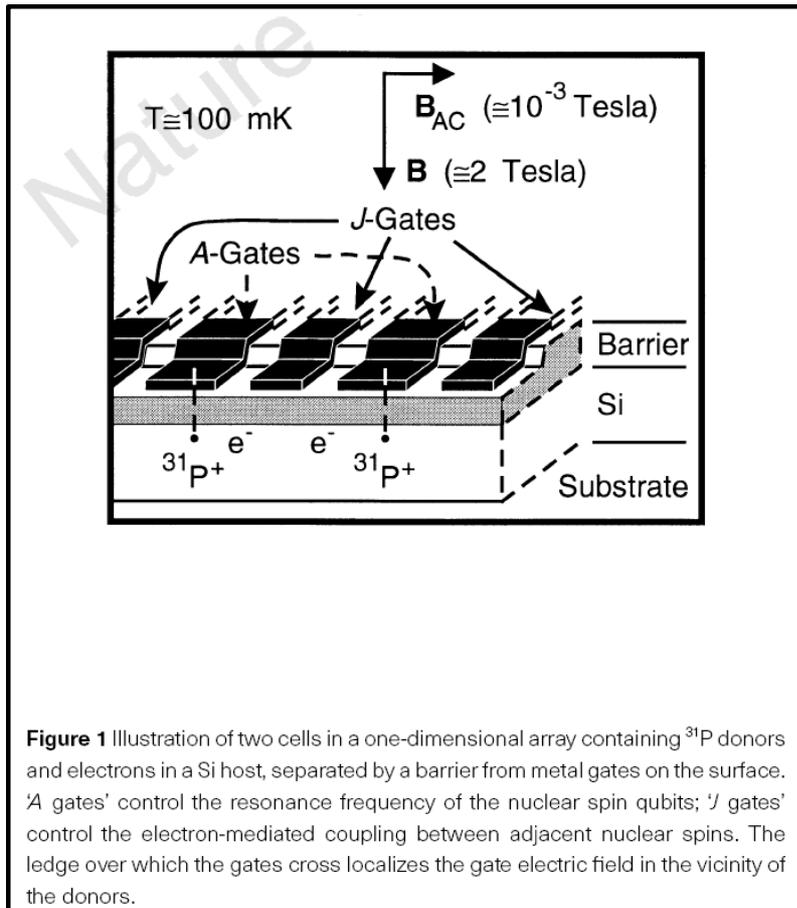


Figure 1 Illustration of two cells in a one-dimensional array containing ^{31}P donors and electrons in a Si host, separated by a barrier from metal gates on the surface. 'A gates' control the resonance frequency of the nuclear spin qubits; 'J gates' control the electron-mediated coupling between adjacent nuclear spins. The ledge over which the gates cross localizes the gate electric field in the vicinity of the donors.

FIG. 1.3 – Schéma du montage expérimental théorique de Kane d'après la référence [31].

Les Codes Correcteurs d'Erreurs au Secours de l'Ordinateur Quantique

Une introduction sur la genèse de l'ordinateur quantique ne peut être complète sans un mot sur les codes correcteurs d'erreurs quantiques. En effet, après Shor [6], la preuve de la supériorité d'un ordinateur quantique sur un ordinateur classique n'était plus à faire (pour certaines applications particulières en tout cas) mais tout le monde savait bien cet algorithme ne tenait pas compte d'éventuelles erreurs expérimentales inhérentes à toute expérience. En 1995, Adrew Steane de l'Université d'Oxford, que nous avons déjà mentionné, présente un code correcteur d'erreurs basé sur la mécanique quantique [35]. Très vite Calderbank et Shor [36, 37] emboîtent le pas et confirment ce que Steane avait déjà initié un an auparavant. La conclusion de tout cela sera qu'un code CSS (pour Calderbank, Shor et Steane) existe et que les défauts expérimentaux peuvent à présent être pris en compte. Daniel Gottesman a lui montré comment quantifier ces erreurs et comment donner une valeur limite d'erreur autorisée lors d'une expérience pour pouvoir effectuer par exemple l'algorithme de Shor de façon juste [38]. Toutefois, on notera que le prix à payer pour avoir un code correcteur d'erreurs est l'augmentation du nombre de qubits nécessaires. En effet, le code CSS prévoit l'emploi de qubits additionnels pour

chaque qubit à corriger. Les auteurs du code CSS ont montré que pour corriger n'importe quelle erreur sur un qubit donné (corrigée par une série de rotations), il était nécessaire de posséder 7 qubits supplémentaires. Cela certainement augmente les besoins en qubits et les temps de calculs.

1.2.2 Critères de DiVincenzo et 'Carte Routière' de l'Ordinateur Quantique

Dans un article paru dans *Fortschritte der Physik* et à présent très fameux, David DiVincenzo de IBM T.J. Watson Research Center énonce 5 critères qui doivent être satisfaits pour pouvoir espérer construire un ordinateur quantique [39]. Voici les critères dits de DiVincenzo :

- 1-Nécessité d'avoir un système physique à grande échelle avec des qubits bien caractérisés.
- 2-La possibilité d'initialiser l'état des qubits dans un état simple et bien défini, comme $|000\dots\rangle$.
- 3-Temps de décohérence longs, bien plus long que le temps d'une seule opération logique.
- 4-Posséder un jeu universel de portes quantiques.
- 5-Capacité de mesure d'un qubit bien spécifique.

A ces 5 critères initiaux sont rajoutés 2 autres critères annexes 6 et 7 relatifs plutôt à la communication de l'information quantique plutôt que la production :

- 6-Possibilité d'interconnecter des qubits stationnaires et des qubits volants.
- 7-Possibilité de transmettre de manière sûre des qubits volants à des endroits bien spécifiques.

Toute la communauté scientifique actuelle spécialiste de l'information quantique s'accorde pour confirmer que les critères de DiVincenzo sont justes, universels et donc nécessaires à toute implémentation expérimentale.

Suivant ces critères, en 2002, l'ARDA américaine (Advanced Research and Development Activity) publia une "Carte Routière" de la science de l'information quantique (**Quantum Information Science and Technology Roadmap**). Depuis en 2004, la version 2 a été publiée et peut être trouvée sur le site internet du Los Alamos National Laboratory [40]. Il n'est pas tout à fait transparent qui est derrière l'ARDA mais certainement une agence de sécurité américaine (NSA ?), dans tout les cas, l'ARDA a choisi l'information quantique comme étant une science émergente qui méritait d'être structurée (en regroupant des laboratoires, universités et entreprises) et en commençant par des mises au points et des objectifs bien précis (d'où la mise en place de cette carte routière).

Ce rapport de l'ARDA comporte plus de 250 pages et est bien fourni en information. Toutes les différentes approches actuelles sont envisagées comme la RMN, les ions piégés, la photonique et les boîtes quantiques dont nous avons parlé plus haut. Il est aussi discuté des autres voies dont nous n'avons pas parlé comme les qubits supraconducteurs,

The Mid-Level Quantum Computation Roadmap: Promise Criteria										
QC Approach	The DiVincenzo Criteria							#6	#7	
	Quantum Computation					[Grey Bar]	QC Networkability			
	#1	#2	#3	#4	#5		#6			#7
NMR	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Trapped Ion	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Neutral Atom	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Cavity QED	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Optical	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Solid State	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Superconducting	☉	☉	☉	☉	☉	[Grey Bar]	☉	☉		
Unique Qubits	This field is so diverse that it is not feasible to label the criteria with "Promise" symbols.									

Legend: ☉ = a potentially viable approach has achieved sufficient proof of principle
☉ = a potentially viable approach has been proposed, but there has not been sufficient proof of principle
☉ = no viable approach is known

FIG. 1.4 – Tableau récapitulatif publié par l’ARDA sur les différentes approches de l’ordinateur quantique et leur état d’avancement selon les critères de DiVincenzo.

les atomes neutres (type pièges dipolaires et condensats de Bose-Einstein) et les cavités en électrodynamique quantique. La figure 1.4 présente un tableau récapitulatif publié par l’ARDA sur les différentes approches de l’ordinateur quantique et leur état d’avancement selon les 5+2 critères de DiVincenzo. La légende explique les 3 degrés d’avancement expérimentalement pour chaque approche et sur chaque critère. On voit qu’il y a l’approche potentiellement viable et qui a été prouvée expérimentalement, l’approche potentiellement viable qui a été faite mais pas encore prouvée et le cas où aucune approche viable n’est connue à ce jour. On voit bien là que les 2 voies les plus avancées sont les ions piégés et la RMN avec un gros problème pour la RMN selon le premier critère de pouvoir adresser chaque qubit individuellement. On voit aussi que pour les critères de communications quantiques, bien évidemment la photonique est très en avance et que pas grand chose n’a été jusqu’à présent fait dans les autres domaines. Ce qui est nommé *Optical* dans le tableau englobe ce qui nous intéresse directement, les boîtes quantiques en tant qu’émetteurs à photons uniques indiscernables pour réaliser KLM. On peut voir que ce domaine n’est pas des plus avancés mais l’on peut surtout voir que rien (en tout cas pour les 5 premiers critères) n’empêche réellement cette approche d’être la bonne.

Ce rapport essaie de faire un résumé et de donner l’état de l’art de chaque voie mais tente aussi de suggérer ce qui devrait être fait d’ici 2007 et d’ici 2012 dans le domaine. A la page 4, le rapport prévoit qu’en 2007, ou devrait être capable de coder un qubit unique dans un état logique donné au milieu de plusieurs autres qubits. On devra également être capable de pouvoir réussir une correction d’erreur répétitive sur un qubit logique et enfin transférer un état de qubit sur un autre qubit avec une grande fidélité. Pour 2012, il semble que les auteurs aient du mal à se projeter si loin et ils voient seulement l’implémentation d’un code correcteur d’erreur quantique. Cela suggère tout de même de posséder un bon

contrôle de chaque qubit et d'en posséder un grand nombre comme nous l'avons vu dans la partie précédente. Le mot "seulement" étant bien entendu relatif au vu de la complexité de la tâche.

On notera que depuis juin 2005, sous l'édition de Peter Zoller, il existe une version européenne de cette "carte routière" de l'information et la communication quantique [41]. Les opinions et conclusions sont similaires à celles de leurs homologues américaines. A travers ce rapport de la ERA (pour **E**uropean **R**esearch **A**dvisory **B**oard), on voit que l'Union Européenne tout comme les Etats-Unis a jugé ce domaine émergent de la physique comme étant très prometteur.

1.3 Les Boîtes Quantiques par la Voie Photonique

Dans le rapport de l'ARDA, la carte routière fait état de l'avancement entre autre des boîtes quantiques comme qubit. Comme les auteurs le soulignent, même si pour le moment cette voie semble moins facile (à nouveau facile étant bien entendu relatif) que celle employée par d'autres approches (RMN, ions piégés, atomes neutres), il est bien évident que sur le long terme, les boîtes quantiques seraient beaucoup plus avantageuses. En premier lieu et principalement parce que l'étude de ce système pourrait utiliser les facilités actuelles de la microélectronique notamment du silicium, germanium, et de GaAs dont la technologie est très bien connue, mais aussi des matériaux II-VI qui nous intéressent directement.

Toutefois, notre approche est différente de celle décrite dans le rapport de l'ARDA qui voit les boîtes quantiques comme étant porteurs de spin électronique et le spin de l'électron comme étant le qubit de travail. Dans notre cas nous nous intéressons dans cette thèse aux boîtes quantiques comme sources de photons uniques indiscernables pour implémenter la proposition de Knill, Laflamme et Milburn [24] comme nous l'avons déjà précisé auparavant. Ceci dit, l'intérêt des boîtes quantiques est aussi que c'est un système auquel on peut rajouter de multiples degrés de libertés. Comme nous le verrons un peu plus en détails dans le chapitre 3, des boîtes peuvent être étudiées optiquement, peuvent être chargées, peuvent être soumise à des champs magnétiques, peuvent être couplées entre elles ou encore avoir leurs temps d'émissions modifiés. A travers tout ces aspects, la boîte quantique semble donc être un système extrêmement prometteur et qui n'est certainement qu'au commencement de son développement.

Dans ce manuscrit, nous jetterons tout d'abord dans le chapitre 2 les bases de la théorie quantique de la lumière nécessaire à la compréhension de phénomènes tel que le dégroupement de photons, étape nécessaire à franchir avant de pouvoir s'assurer que nous possédons une source de photons uniques. Nous décrirons également la notion d'indiscernabilité de photon, aboutissant à des expériences tel que la coalescence de photons, qui est à la base de la proposition d'un ordinateur quantique uniquement fait d'optique linéaire [24]. Ensuite dans le chapitre 3, il sera question de s'équiper des outils de la physique des semiconducteurs et de s'intéresser en particulier aux boîtes quantiques semiconductrices

elles-mêmes en tant qu'objet de taille nanométrique de la physique de la matière condensée. Leurs croissances, leurs propriétés magnéto-optiques et leurs éventuelles applications seront décrites. Nous poursuivrons dans le chapitre 4 par une description détaillée du montage expérimental et insisterons bien, entre autre, sur tous les éléments de cryogénie, de spectroscopie, de comptage de photons, de mesures de cohérence et sur les systèmes lasers utilisés. Avec ce montage, nous montrerons dans le chapitre 5 des résultats d'optique quantique d'autocorrélation de photons et de corrélations croisées biexciton-exciton, en excitation continue et en excitation impulsionnel. Des études de longueurs de cohérence sur raies uniques seront ensuite décrites dans le chapitre 6 et cela dans le but d'apporter une information directe sur l'indiscernabilité des photons émis par une boîte. Nous verrons aussi en quoi la cohérence des photons est un point important dans notre cas. En s'interrogeant sur la meilleure façon de créer des excitons dans une boîte, nous présenterons une première étude d'excitation de boîtes uniques en 2 photons infrarouge ouvrant des perspectives intéressantes, notamment sur le pompage optique. Pour terminer, dans le chapitre 7 nous conclurons sur les résultats de cette thèse, sur ce qui devrait être refait, confirmé ou bien poursuivi. Nous décrirons également les perspectives d'expériences futures et notamment comment créer de l'enchevêtrement en temps-énergie avec une boîte quantique.

Bibliographie

- [1] *Cramming more components onto integrated circuits.*
G.E. Moore, Electronics **38**, 8 (1965).
- [2] *Simulating Physics with Computers.*
R.P. Feynman, Int. J. Theor. Phys. **21**, 467 (1982).
- [3] *Quantum theory, the Church-Turing principle and the universal quantum computer.*
D. Deutsch, Proc. R. Soc. Lond. A **400**, 97 (1985).
- [4] *Relative State Formulation of Quantum Mechanics.*
H. Everett, Rev. Mod. Phys. **29**, 454 (1957).
- [5] *Rapid solutions of problems by quantum computation.*
D. Deutsch, and R. Jozsa, Proc. R. Soc. Lond. A **439**, 553 (1992).
- [6] *Polynomial-Time Algorithms for Prime Factorization and Discrete Logarithms on a Quantum Computer.*
P.W. Shor, SIAM J. Sci. Statist. Comput. **26**, 1484 (1997).
- [7] *A fast quantum mechanical algorithm for database search.*
L.K. Grover, Proceedings 28th Annual ACM Symposium on the Theory of Computing (STOC), 212 (1996).
- [8] *Quantum mechanics helps for searching a needle in a haystack.*
L.K. Grover, Phys. Rev. Lett. **79**, 325 (1997).
- [9] *Simulated Quantum Computation of Molecular Energies.*
A. Aspuru-Guzik, A.D. Dutoi, P.J. Love, and M. Head-Gordon, Science **309**, 1704 (2005).
- [10] *Quantum Computation and Quantum Information.*
M.A. Nielsen, et I.L. Chuang, Cambridge University Press (2000).
- [11] *Can Quantum-Mechanical Description of Physical Reality Be Considered Complete ?*
A. Einstein B. Podolsky, et N. Rosen, Phys. Rev. **47**, 777 (1935).
- [12] *Quantum Computations with Cold Trapped Ions.*
J.I. Cirac, et P. Zoller, Phys. Rev. Lett. **74**, 4091 (1995).
- [13] *Demonstration of a Fundamental Quantum Logic Gate.*
C. Monroe, D.M. Meekhof, B.E. King, W.M. Itano, et D.J. Wineland, Phys. Rev. Lett. **75**, 4714 (1995).
- [14] *Realization of the Cirac-Zoller controlled-NOT quantum gate.*
F. Schmidt-Kaler, H. Häffner, M. Riebe, S. Gulde, G.P.T. Lancaster, T. Deuschle, C. Becher, C.F. Roos, J. Eschner, et R. Blatt, Nature **422**, 408 (2003).

- [15] *Experimental demonstration of a robust, high-fidelity geometric two ion-qubit phase gate.*
D. Leibfried, B. DeMarco, V. Meyer, D. Lucas, M. Barrett, J. Britton, W.M. Itano, B. Jelenkovi, C. Langer, T. Rosenband, et D.J. Wineland, *Nature* **422**, 412 (2003).
- [16] *Architecture for a large-scale ion-trap quantum computer.*
D. Kielpinski, C. Monroe, et D.J. Wineland, *Nature* **417**, 709 (2002).
- [17] *How to build a 300 bit, 1 Gop quantum computer.*
A.M. Steane, arXiv :quant-ph/0412165 (2004).
- [18] *Ensemble quantum computing by NMR spectroscopy.*
D.G. Cory, A.F. Fahmy, et T.F. Havel, *Proc. Natl. Acad. Sci. (USA)* **94**, 1634 (1997).
- [19] *Bulk Spin-Resonance Quantum Computation.*
N.A. Gershenfeld, et I.L. Chuang, *Science* **275**, 350 (1997).
- [20] *Experimental realization of a quantum algorithm.*
I.L. Chuang, L.M.K. Vandersypen, X. Zhou, D.W. Leung, et S. Lloyd, *Nature* **393**, 143 (1998).
- [21] *Implemetation of a quantum search algorithm on a quantum computer.*
J.A. Jones, M. Mosca, et R.H. Hansen, *Nature* **393**, 344 (1998).
- [22] *Experimental realization of Shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance.*
L.M.K. Vandersypen, M. Steffen, G.Breyta, C.S. Yannoni, M.H. Sherwood, et I.L. Chuang, *Nature* **414**, 883 (2001).
- [23] *Experimental Quantum Teleportation.*
D. Bouwmeester, J.W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, et A. Zeilinger, *Nature* **390**, 575 (1997).
- [24] *Experimental Entanglement Swapping : Entangling Photons that Never Interacted.*
J.W. Pan, D. Bouwmeester, H. Weinfurter, et A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3891 (1998).
- [25] *A scheme for efficient quantum computation with linear optics.*
E. Knill, R. Laflamme, et G.J. Milburn, *Nature* **409**, 46 (2001).
- [26] *High-Fidelity Quantum Logic Operations Using Linear Optical Elements.*
J.D. Franson, M.M. Donegan, M.J. Fitch, B.C. Jacobs, et T.B. Pittman, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 137901 (2002).
- [27] *Demonstration of an all-optical quantum controlled-NOT gate.*
J.L. O’Brien, G.J. Pryde, A.G. White, T.C. Ralph, et D. Branning, *Nature* **426**, 264 (2003).
- [28] *Experimental controlled-NOT logic gate for single photons in the coincidences basis.*
T.B. Pittman, M.J. Fitch, B.C. Jacobs, et J.D. Franson, *Phys. Rev. A* **68**, 32316 (2003).
- [29] *Realization of a Photonic CNOT Gate sufficient for Quantum Computation.*
S. Gasparoni, J.-W. Pan, P. Walther, T. Rudolph, et A. Zeilinger, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 20504 (2004).

-
- [30] *Experimental one-way quantum computation.*
P. Walther, K.J. Resch, T. Rudolph, E. Schenk, H. Weinfurter, V. Vedral, M. Aspelmeyer, et A. Zeilinger, *Nature* **434**, 169 (2005).
- [31] *A silicon-based nuclear spin quantum computer*
B.E. Kane, *Nature* **393**, 133 (1998).
- [32] *Construction of a silicon-based solid state quantum computer.*
A.S. Dzurak, M.Y. Simmons, A.R. Hamilton, R.G. Clark, R. Brenner, T.M. Buehler, N.J. Curson, E. Gauja, R.P. McKinnon, L.D. Macks, M. Mitic, J.L. O'Brien, L. Oberbeck, D.J. Reilly, S.R. Schofield, F.E. Stanley, D.N. Jamieson, S. Prawer, C. Yang and G.J. Milburn, *Quant. Inf. and Compu.* **1**, 82 (2001).
- [33] *Quantum computation with quantum dots.*
D. Loss, et D.P. DiVincenzo, *Phys. Rev. A* **57**, 120 (1998).
- [34] *Quantum Information Processing Using Quantum Dot Spins and Cavity QED.*
A. Imamoglu, D.D. Awschalom, G. Burkard, D.P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, et A. Small, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4204 (1999).
- [35] *Error correcting codes in quantum theory.*
A. Steane, *Phys.Rev.Lett.* **77**, 793 (1995).
- [36] *Good quantum error-correcting codes exist.*
A.R. Calderbank, et P.W. Shor, *Phys. Rev. A* **54**, 1098 (1996).
- [37] *Quantum error correction and orthogonal geometry.*
A.R. Calderbank, E.M. Rains, N.J.A. Sloane, et P.W. Shor, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 406 (1997).
- [38] *A theory of fault-tolerant quantum computation.*
D. Gottesman, *Phys. Rev. A* **57**, 127 (1998).
- [39] *The Physical Implementation of Quantum Computation.*
D.P. DiVincenzo, *Fort. Phys.* **48**, 771 (2001).
- [40] *A Quantum Information Science and Technology Roadmap.*
<http://qist.lanl.gov/> (2004).
- [41] *Quantum Information Processing and Communication.*
<http://qist.ect.it/Reports/reports.htm> (2005).

Chapitre 2

Photons Uniques Indiscernables

Sommaire

2.1	Théorie Quantique de la Lumière et Fonction de Corrélation dans une "Coquille de Noix"	20
2.1.1	Quantification du Champ Électromagnétique	20
2.1.2	Comptons les Tous	23
2.1.3	Fonctions de Corrélation du Champ Électromagnétique	25
2.1.4	Loi Poissonnienne du Laser	29
2.2	Zoologie des Sources de Photons Uniques	32
2.2.1	Atomes et Ions	32
2.2.2	Photons Annoncés	34
2.2.3	Molécules	36
2.2.4	Nanocristaux	37
2.2.5	Centres Colorés	38
2.2.6	Boîtes Quantiques Epitaxiées Auto-Assemblés	39
2.3	Indiscernabilité de 2 Photons	39
2.3.1	Approche Simpliste	39
2.3.2	Cohérence et Temps de Vie	40
2.3.3	Approche Réaliste	44
2.3.4	Effet Hong-Ou-Mandel	45

Epitomé

Nous allons présenter dans cette partie des notions utiles pour comprendre les expériences et résultats des chapitres 5 et 6. Plus généralement, ce chapitre pourrait être pris comme étant un tutorial d'optique quantique mettant l'accent sur la statistique de photons émis par certains systèmes et notamment les boîtes quantiques semiconductrices décrites en détails dans le chapitre suivant. Tout d'abord un bref rappel de théorie quantique de la lumière sera présenté dans lequel sera décrit les différents régimes d'émission de photons. La fonction de corrélations quantiques $g^{(2)}$ sera dérivée ainsi que les méthodes d'études expérimentales de la statistique de photons. Puis l'on passera en revue les différentes sources de photons uniques qui existent jusqu'à présent. En particulier on s'attachera à souligner les avantages et inconvénients de chaque source. Enfin, nous décrirons l'effet de coalescence de photons, effet dû à l'indiscernabilité des photons émis par un système. Nous décrirons ce qui fait que 2 photons sont "indiscernablement" identiques. A ce sujet, nous verrons quels sont les paramètres pertinents pour quantifier cette coalescence et notamment nous verrons une dépendance en fonction de la durée de vie du système et de son temps de cohérence.

2.1 Théorie Quantique de la Lumière et Fonction de Corrélation dans une "Coquille de Noix"

2.1.1 Quantification du Champ Électromagnétique

Si l'on retrace en substance les premiers chapitres du livre de Rodney Loudon "The Theory of Quantum Light" [1], on peut suivre l'évolution chronologique de la théorie quantique de la lumière et comprendre comment nous sommes arrivé à quantifier le champ électromagnétique au même titre que les niveaux d'énergies d'un atome.

Dans son livre, Loudon commence par montrer que le champ électromagnétique (que l'on assimilera au champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$), d'après les équations de Maxwell, est solution de l'équation :

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.1)$$

On peut alors montrer que le champ électrique prend des valeurs discrètes lorsque l'on applique les équations de Maxwell à une boîte rectangulaire à 3 dimensions, de côtés finis. Le champ électrique est alors une onde stationnaire qui possède un nombre discret de solutions et donc de "modes optiques". On peut ensuite étendre les dimensions à l'infini de la cavité-boîte et obtenir un nombre dénombrable de modes du champ.

Temporellement, l'équation (2.1) se résout aussi très facilement et l'on peut montrer que $\vec{E}(\vec{r}, t)$ vérifie une équation temporelle type oscillateur harmonique. La forme du champ est donné par :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r})e^{i\omega t} \quad (2.2)$$

De plus, il est facile de montrer que l'énergie électromagnétique ε_{em} emmagasinée dans une telle cavité est donnée par :

$$\varepsilon_{em} = \frac{1}{2} \int_{cavité} \epsilon_0 |\vec{E}(\vec{r}, t)|^2 dV \quad (2.3)$$

En théorie classique, $\vec{E}_0(\vec{r}, t)$ peut a priori prendre n'importe quelle valeur continue et l'on attendrait la même chose de ε_{em} . Toutefois, pour expliquer les expériences de l'époque, i.e. pour expliquer les observations sur le rayonnement du corps noir, Planck émet sa fameuse hypothèse de quantification [2]. Planck postule que ε_{em} doit être quantifié pour comprendre les résultats sur le corps noir. L'hypothèse de Planck impose donc que $\varepsilon_{em} = (n + 1/2)\hbar\omega$ où n est un nombre entier positif. Jusqu'à présent, on notera qu'aucune hypothèse n'a été faite quand à la quantification de \vec{E} . Toutefois, on voit bien que la relation entre l'énergie ε_{em} et n impose des restrictions également sur les valeurs possibles du champ électromagnétique d'après (2.3).

Pour la suite, il est plus facile de travailler avec le potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r}, t)$ qu'avec les champs \vec{E} . Sans rentrer dans les détails de calculs fastidieux, on peut montrer qu'en jauge de Coulomb (i.e. $\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = 0$) le potentiel vecteur suit également une équation de la forme (2.1) :

$$\nabla^2 \vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{A}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.4)$$

Cette équation est valide en l'absence de charges. Comme il a été vu précédemment, le vecteur potentiel dans une cavité sera une superposition d'ondes stationnaires et la solution générale de l'équation (2.4) en \vec{A} sera :

$$\vec{A} = \sum_{\vec{k}} [\vec{A}_{\vec{k}} e^{i\vec{k}\vec{r}} + \vec{A}_{\vec{k}}^* e^{-i\vec{k}\vec{r}}] \quad (2.5)$$

avec les composantes de \vec{k} données par $k_i = 2\pi n_i / L_i$ où $i = x, y, z$, L_i étant la dimension i de la cavité et n_i étant un entier relatif. Les composantes de Fourier de \vec{A} étant indépendantes, d'après (2.4), chacune d'elle va vérifier l'équation :

$$k^2 \vec{A}_{\vec{k}}(t) + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{A}_{\vec{k}}(t)}{\partial t^2} = 0 \quad (2.6)$$

Les coefficients de Fourier vérifient alors l'équation d'un oscillateur harmonique donnée par :

$$\frac{\partial^2 \vec{A}_{\vec{k}}(t)}{\partial t^2} + \omega_{\vec{k}}^2 \vec{A}_{\vec{k}}(t) = 0 \quad (2.7)$$

La relation de dispersion étant donnée par $\omega_{\vec{k}} = c|\vec{k}|$. Le champ électromagnétique peut alors être quantifié par conversion de l'équation (2.7) en une équation d'oscillateur harmonique quantique. Pour se ramener à un tel résultat, on introduit les variables normales Q et P équivalente aux variables de moment et de position impliquées dans le cas de l'oscillateur harmonique [3]. En posant :

$$\vec{A}_{\vec{k}} = \frac{1}{\sqrt{4\epsilon_0 V \omega_{\vec{k}}^2}} (\omega_{\vec{k}} Q_{\vec{k}} + iP_{\vec{k}}) \epsilon_{\vec{k}} \quad (2.8)$$

$$\vec{A}_{\vec{k}}^* = \frac{1}{\sqrt{4\epsilon_0 V \omega_{\vec{k}}^2}} (\omega_{\vec{k}} Q_{\vec{k}} - iP_{\vec{k}}) \epsilon_{\vec{k}} \quad (2.9)$$

on peut montrer que l'énergie d'un seul mode \vec{k} (mode optique devenu mode quantique) est donnée par :

$$E_{\vec{k}} = \frac{1}{2} (\omega_{\vec{k}}^2 Q_{\vec{k}}^2 + P_{\vec{k}}^2) \quad (2.10)$$

Cette expression est précisément celle de la forme habituelle d'un oscillateur harmonique classique. Pour passer à l'oscillateur harmonique quantique, il suffit alors d'identifier $\vec{A}_{\vec{k}}$ et $\vec{A}_{\vec{k}}^*$ aux opérateurs $\hat{a}_{\vec{k}}$ de destruction et $\hat{a}_{\vec{k}}^\dagger$ de création (à des constantes près) du "quanta" nécessaire à passer d'un niveau de l'oscillateur à un autre. Ce quanta d'énergie $\hbar\omega_{\vec{k}}$ sera appelé photon de vecteur d'onde \vec{k} . De plus, les états du champ radiatif total dans la cavité virtuelle que nous avons introduite, peuvent être définis par le nombre de photons $n_{\vec{k}_1}, n_{\vec{k}_2}, n_{\vec{k}_3}, \dots$ excités dans les modes respectivement $\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3, \dots$. On en déduit, sachant qu'a priori tous les modes de la cavité sont indépendants entre eux, qu'un état du champ total s'écrit de la façon suivante :

$$|n_{\vec{k}_1}, n_{\vec{k}_2}, n_{\vec{k}_3}, \dots\rangle = |\{n_{\vec{k}_i}\}\rangle = |n_{\vec{k}_1}\rangle |n_{\vec{k}_2}\rangle |n_{\vec{k}_3}\rangle \dots \quad (2.11)$$

L'état final est donc un produit tensoriel d'états nombres de photons (encore appelé états de Fock) dans un mode donné. On a alors la création d'un photon de plus dans le mode \vec{k}_i donnée par la relation :

$$\hat{a}_{\vec{k}_i}^\dagger |n_{\vec{k}_1}, n_{\vec{k}_2}, n_{\vec{k}_3}, \dots, n_{\vec{k}_i}, \dots\rangle = \sqrt{(n_{\vec{k}_i} + 1)} |n_{\vec{k}_1}, n_{\vec{k}_2}, n_{\vec{k}_3}, \dots, n_{\vec{k}_i} + 1, \dots\rangle \quad (2.12)$$

Dès lors, le champ électrique est lui aussi un opérateur qui est la somme de tous les champs $\vec{E}_{\vec{k}}$ du mode \vec{k} :

$$\hat{E} = \sum_{\vec{k}} \hat{E}_{\vec{k}} = \sum_{\vec{k}} i \sqrt{\frac{\hbar\omega_{\vec{k}}}{2\epsilon_0 V}} \cdot \vec{\epsilon}_{\vec{k}} [\hat{a}_{\vec{k}} \cdot e^{-i\omega_{\vec{k}}t + i\vec{k} \cdot \vec{r}} - \hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \cdot e^{i\omega_{\vec{k}}t - i\vec{k} \cdot \vec{r}}] \quad (2.13)$$

avec $\vec{\epsilon}_{\vec{k}}$ le vecteur représentant l'état de polarisation du champ \vec{E} .

Toutes les considérations de ce chapitre sont nécessaires à la compréhension des problèmes mis en jeu. Notamment une bonne compréhension de la notion d'indiscernabilité ne peut se faire que par la connaissance des rudiments de la théorie quantique de la lumière. On rappellera enfin que l'origine de la théorie quantique de la lumière est attribuée à Paul Dirac dans son article [4]. Pour une mise au point éclairée des premiers jours de cette théorie, on se reportera à l'excellent article de E. Fermi de 1932 qu'il a donné à un Symposium de Physique Théorique à l'Université du Michigan en 1930 [5].

2.1.2 Comptons les Tous

États Quantiques de Nombre de Photons

D'après ce que nous avons vu précédemment, nous pouvons en déduire l'Hamiltonien quantique du champ électromagnétique total donné par :

$$\hat{H}_{em} = \sum_{\vec{k}} \hbar\omega_{\vec{k}} (\hat{a}_{\vec{k}}^\dagger \hat{a}_{\vec{k}} + \frac{1}{2}) \quad (2.14)$$

De plus l'énergie électromagnétique totale de la radiation dans la cavité se trouvant dans l'état $|\{n_{\vec{k}_i}\}\rangle$ est alors donné par :

$$\varepsilon_{em} = \sum_{\vec{k}} (n_{\vec{k}} + \frac{1}{2}) \hbar\omega_{\vec{k}} \quad (2.15)$$

On notera également que pour un grand nombre de photons, donc pour un état quasi-classique, il existe une relation d'incertitude d'Heisenberg de la forme :

$$\Delta n \cdot \Delta \phi = 1/2 \quad (2.16)$$

Il faut bien préciser que ϕ n'est pas un opérateur dans cette situation d'où la raison pour laquelle il est écrit ϕ et non pas $\hat{\phi}$. Cette relation n'est valable que dans certaines situations particulières notamment lorsque l'on a un grand nombre de photons.

Boson un peu plus

Nous avons vu qu'il y avait une analogie directe entre l'oscillateur harmonique quantique et la quantification de la lumière, i.e. du champ électromagnétique. Dès lors, toutes les propriétés d'un oscillateur harmonique vont être exploitables et notamment le fait que l'opérateur de création de photons \hat{a}^\dagger dans le mode \vec{k} ne commute pas avec son adjoint \hat{a} , l'opérateur d'annihilation :

$$[\hat{a}, \hat{a}^\dagger] = \hat{a}\hat{a}^\dagger - \hat{a}^\dagger\hat{a} = 1 \quad (2.17)$$

Ceci est une conséquence directe du fait que les photons sont des bosons. L'autre "type" de particule élémentaire est le fermion comme les électrons, dont l'opérateur de création suit alors la règle d'anticommuation :

$$]\hat{b}, \hat{b}^\dagger[= \hat{b}\hat{b}^\dagger + \hat{b}^\dagger\hat{b} = 1 \quad (2.18)$$

On comprendra mieux plus tard l'importance de ce trait fondamental qui caractérise chaque particule.

Application au Cube Séparateur

A titre d'exemple, considérons le cube séparateur de lumière 50/50 ou cube semi-réfléchissant. Dans ce cas, 50% de la lumière sera transmise et 50% sera réfléchi. La figure

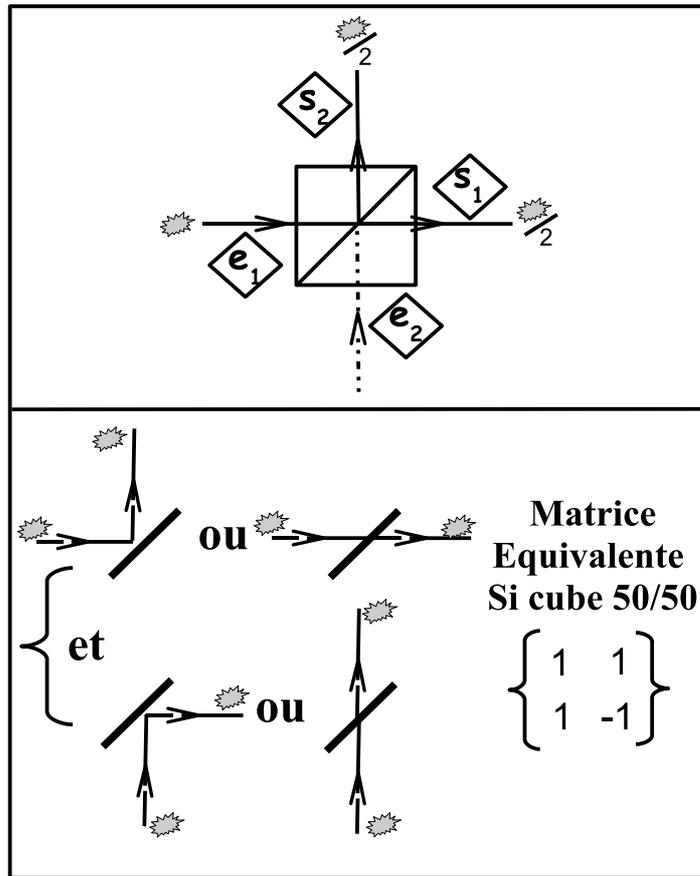


FIG. 2.1 – Cube séparateur 50/50 et sa matrice équivalente.

2.1 représente le schéma d'un tel cube où l'on considère 2 entrées e_1 et e_2 et 2 sorties s_1 et s_2 .

Chaque entrée-sortie correspond à un mode du champ électromagnétique précédemment introduit. Un cube 50/50 met donc en jeu 4 modes, 2 à 2 reliés entre eux. Il est facile de démontrer que la matrice équivalente reliant les 2 entrées aux 2 sorties est celle donnée dans la Fig 2.1. Pour cela, on comprend le signe moins lorsque l'on envisage les 4 possibilités d'entrée/sortie qu'un photon va subir. Dans le cas où le photon arrive par l'entrée e_1 , il peut être réfléchi ou transmis. De même pour e_2 , il peut être à nouveau réfléchi ou transmis. Pour une sortie donnée (par exemple s_1), il apparaît un changement de direction selon que le photon entre en e_1 ou en e_2 . Une autre façon de dériver la matrice d'un cube 50/50 est de considérer la matrice rotation pour laquelle l'angle serait de 45° .

A présent supposons qu'un photon incident arrive sur ce cube par la voie e_1 et qu'aucun photon n'arrive sur la voie e_2 . En termes de création de photons dans un mode cela se traduit par :

$$|1_{e_1}\rangle = \hat{a}_{e_1}^\dagger |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}_{s_1}^\dagger + \hat{a}_{s_2}^\dagger)|0\rangle \quad (2.19)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2}}(|1_{s_1}\rangle + |1_{s_2}\rangle) \quad (2.20)$$

résultat qui traduit le fait que le photon a $|\frac{1}{\sqrt{2}}|^2 = 50\%$ de chance d'être transmis par la voie s_1 et 50% de chance d'être réfléchi par la voie s_2 . Cet exemple nous aidera à mieux comprendre le phénomène d'indiscernabilité dans la partie 2.3.

2.1.3 Fonctions de Corrélation du Champ Électromagnétique

Idée de Glauber

Avec la découverte de l'effet LASER dans les années 50, il est apparu de plus en plus clairement que les états nombres de photons ou états de Fock n'étaient pas du tout appropriés pour expliquer certains phénomènes et notamment le caractère cohérent d'un laser. De plus la phase d'un laser est bien déterminée et cela est incompatible avec l'équation (2.16) où l'incertitude sur la phase du photon est maximum.

En 1963, Roy Glauber, de l'Université d'Harvard, publiait une série d'articles [6, 7, 8] qui reprenaient totalement toute la théorie quantique de la lumière en introduisant d'autres états qui décrivaient parfaitement la lumière issue d'un laser. En particulier le laser était supposé montrer de très fortes corrélations spatiales et sur de grandes distances, phénomène que ni l'optique classique ni les états de Fock ne pouvaient décrire proprement. Jusqu'à cette date, les seules théories existantes, par Mandel et Wolf notamment, étaient basées sur la supposition que le champ électrique d'un rayon lumineux pouvait être décrit par un processus stochastique gaussien classique [9]. Glauber introduisit alors une méthode de mesure de corrélations quantiques du champ électrique dont les différents ordres rendaient compte des expériences de l'époque.

L'idée de départ est de considérer un détecteur idéal à photons avec une taille infiniment petite pour être sûr d'être dans un mode optique et un seul. On suppose aussi que le détecteur ne discrimine pas l'énergie du photon absorbé. Dès lors, l'élément de matrice de l'absorption d'un photon par le détecteur est donné par :

$$\langle f | \hat{\vec{E}}^{(+)}(\vec{r}, t) | i \rangle \quad (2.21)$$

avec $|i\rangle$ et $|f\rangle$ les états initiaux et finaux impliqués dans la détection/absorption. D'après ce que l'on a vu auparavant, $\hat{\vec{E}}^{(+)}$ (ou $\hat{a}_{\vec{k}}$) traduit l'absorption d'un photon du mode \vec{k} par le détecteur. La probabilité $\wp_{\vec{r}}$ de détection par unité de temps, donc la véritable mesure de l'expérimentateur, est alors proportionnelle au module carré de cet élément de matrice, lui-même sommé sur tous les états finaux $|f\rangle$ possibles :

$$\wp_{\vec{r}} \propto \sum_f |\langle f | \hat{\vec{E}}^{(+)}(\vec{r}, t) | i \rangle|^2 \quad (2.22)$$

$$\propto \langle i | \hat{\vec{E}}^{(-)}(\vec{r}, t) \hat{\vec{E}}^{(+)}(\vec{r}, t) | i \rangle \quad (2.23)$$

De même on peut imaginer de mesurer la corrélation d'intensité en deux endroits différents \vec{r} et \vec{r}' et à deux temps différents t et t' d'où :

$$\sum_f | \langle f | \hat{E}^{(+)}(\vec{r}', t') \hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t) | i \rangle |^2 = \langle i | \hat{E}^{(-)}(\vec{r}, t) \hat{E}^{(-)}(\vec{r}', t') \hat{E}^{(+)}(\vec{r}', t') \hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t) | i \rangle \quad (2.24)$$

Cette grandeur peut être considérée comme proportionnelle à la probabilité, par unité de temps au carré, de détecter un photon en \vec{r} au temps t et un autre photon en \vec{r}' au temps t' . On peut introduire de façon plus générale la fonction de corrélation d'ordre 1 :

$$G^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}', t') = Tr\{\rho \hat{E}^{(-)}(\vec{r}, t) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}', t')\} \quad (2.25)$$

et la fonction de corrélation d'ordre 2 :

$$G^{(2)}(\vec{r}_1, t_1; \vec{r}_2, t_2; \vec{r}_3, t_3; \vec{r}_4, t_4) = Tr\{\rho \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_1, t_1) \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_2, t_2) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_3, t_3) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_4, t_4)\} \quad (2.26)$$

où Tr est la trace de la matrice et ρ la matrice densité associé au système. Il existe bien entendu, des fonctions d'ordre supérieurs $n > 2$ mais cela dépasserait la largeur de cette page à écrire et ne serait pas vraiment d'un intérêt pour nous. On notera également que l'ordonnancement des termes du champ électrique dans $G^{(1)}$ et dans $G^{(2)}$ est appelé ordre normal (*normal ordering* en anglais).

Trous d'Young et Fonction d'Ordre 1

Plutôt que la fonction $G^{(1)}$ précédente, il est en fait plus pertinent de définir la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$ qui n'est rien d'autre que la fonction $G^{(1)}$ normalisée :

$$g^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}', t') = \frac{G^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}', t')}{\{G^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}, t) G^{(1)}(\vec{r}', t'; \vec{r}', t')\}^{1/2}} \quad (2.27)$$

La figure 2.2 montre le schéma de principe de la fameuse expérience des trous d'Young. D'après ce que nous avons dit précédemment ; l'intensité mesurée en M n'est autre que la fonction d'autocorrélation $G^{(1)}$ tel que :

$$\begin{aligned} G^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}, t) &= \frac{1}{1/2\epsilon_0 c} \langle \hat{I}(\vec{r}, t) \rangle \\ &= \langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}, t) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t) \rangle \\ &= Tr(\rho \hat{E}^{(-)}(\vec{r}, t) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t)) \end{aligned} \quad (2.28)$$

$\hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t)$ étant la somme des contributions du champ électrique en A et du champ électrique en B i.e. :

$$\hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t) = u_A \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_A, t_A) + u_B \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_B, t_B) \quad (2.29)$$

On peut alors montrer que l'intensité en M est donnée par :

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{I}(\vec{r}, t) \rangle = & 2\epsilon_0 c \{ |u_A|^2 \langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_A, t_A) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_A, t_A) \rangle \\
 & + |u_B|^2 \langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_B, t_B) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_B, t_B) \rangle \\
 & + 2u_A^* u_B \text{Re} \langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_A, t_A) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_B, t_B) \rangle \} \quad (2.30)
 \end{aligned}$$

le troisième terme étant celui responsable des interférences alors que les deux premiers sont eux les termes de l'intensité à travers A lorsque B est bouché et l'intensité à travers B lorsque A est bouché comme à l'habitude.

Il apparaît donc sur cet exemple que la fonction d'autocorrélation d'ordre 1 traduit la mesure de l'intensité lumineuse. En revanche, pour ce qui est de la fonction de corrélation générale, à travers le 3ième terme de l'équation (2.30), on peut voir que la mesure de $g^{(1)}(\vec{r}_A, t_A; \vec{r}_B, t_B)$ est une mesure de la cohérence optique de la lumière. Il s'agit aussi bien de mesurer la cohérence temporelle que la cohérence spatiale transverse. La fonction de corrélation permet donc de mesurer la longueur de cohérence, c'est à dire le temps de cohérence de la radiation lumineuse. Sur cet exemple il ressort que classiquement ou quantiquement, les deux points de vue sont équivalents pour ce qui est de ce type de mesure. Les prédictions sont les mêmes dans les deux cas et en particulier pour les phénomènes d'interférences à division d'amplitude. Dès lors, l'expérience des trous d'Young ou l'interféromètre de Michelson peuvent être traités de façon équivalente avec les deux théories. En revanche, la mesure de corrélations de l'intensité lumineuse ou du moins la fonction de corrélations d'ordre 2, $g^{(2)}$ traduira elle des effets purement quantiques de la lumière qui ne peuvent pas être expliqués classiquement.

Dégroupement de Photons et Fonction d'Ordre 2

Intéressons nous à présent à la fonction de corrélation d'ordre deux $g^{(2)}$ et pour cela, comme précédemment, il est plus facile de travailler avec la fonction $g^{(2)}$ plutôt que la fonction $G^{(2)}$. Montrons tout d'abord que cette fonction revient à s'intéresser à la corrélation de l'intensité de la lumière et non plus du champ électrique. En reprenant l'expression (2.26) de détection de 2 photons par des détecteurs parfaits, aux temps t_1 et t_2 et aux positions \vec{r}_1 et \vec{r}_2 on a :

$$g^{(2)}(\vec{r}_1, t_1; \vec{r}_2, t_2) = \frac{G^{(2)}(\vec{r}_1, t_1; \vec{r}_2, t_2)}{G^{(1)}(\vec{r}_1, t_1; \vec{r}_1, t_1) G^{(1)}(\vec{r}_2, t_2; \vec{r}_2, t_2)} \quad (2.31)$$

En terme de champ électrique, l'expression est donnée par :

$$g^{(2)}(\vec{r}_1, t_1; \vec{r}_2, t_2) = \frac{\langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_1, t_1) \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_2, t_2) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_2, t_2) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_1, t_1) \rangle}{\langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_1, t_1) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_1, t_1) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(\vec{r}_2, t_2) \hat{E}^{(+)}(\vec{r}_2, t_2) \rangle} \quad (2.32)$$

De plus, l'origine temporelle, le "0" n'a pas d'importance lorsque l'on traite des phénomènes physiques indépendant du temps. Dès lors, on peut remplacer les paramètres t_1 et t_2 par les paramètres t et $t + \zeta$. De plus, nous ne nous intéresserons qu'aux corrélations

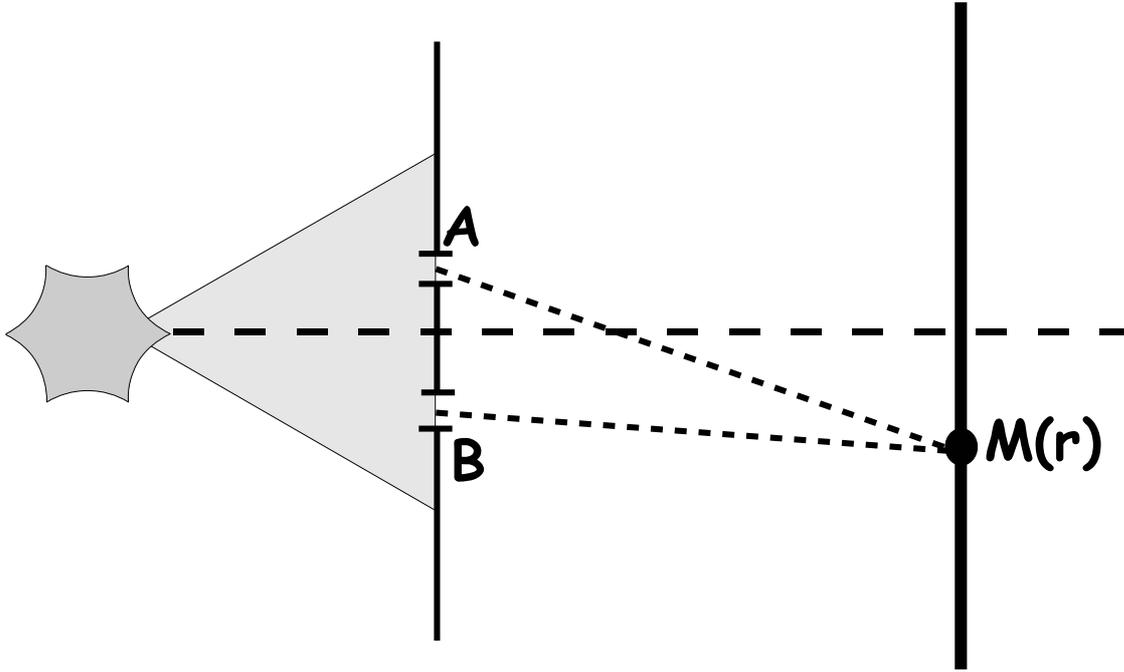


FIG. 2.2 – Expérience des trous d'Young.

temporelles et non spatiales donc l'expression va se résumer ainsi :

$$\begin{aligned}
 g^{(2)}(t; t + \zeta) &= \frac{G^{(2)}(t; t + \zeta)}{G^{(1)}(t; t) G^{(1)}(t + \zeta; t + \zeta)} \\
 &= \frac{\langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(-)}(t + \zeta) \hat{E}^{(+)}(t) \hat{E}^{(+)}(t + \zeta) \rangle}{\langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t + \zeta) \hat{E}^{(+)}(t + \zeta) \rangle} \quad (2.33)
 \end{aligned}$$

Cette expression peut s'écrire encore :

$$g^{(2)}(t; t + \zeta) = \frac{\langle : I(t + \zeta) I(t) : \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (2.34)$$

les ":" faisant état du fait que l'on considère l'ordre normal que nous avons déjà mentionné auparavant. Cette expression montre bien que la mesure de $g^{(2)}$ est en fait une mesure de corrélations d'intensité du champ électrique.

A présent, intéressons nous à l'expérience décrite par la figure 2.3 avec un photon incident sur un cube séparateur 50/50 précédemment décrit. L'idée est alors de regarder les temps d'arrivés de chaque photon sur les détecteurs à photons uniques. Supposons que le détecteur 1, absorbant les photons réfléchis, déclenche un "chronomètre" au temps t . Le détecteur 2, absorbant les photons transmis, va regarder combien de temps ζ il a attendu avant de voir à son tour un photon arrivé, i.e. avant d'arrêter le chronomètre. Puisque l'on considère l'ensemble des valeurs de l'intensité à un instant donné, cela constitue une

moyenne d'ensemble. Dans notre situation, la moyenne d'ensemble ne dépend pas du temps donc elle est stationnaire. D'après le principe d'ergodicité, on peut assimiler une moyenne temporelle à une moyenne d'ensemble prise à différents instants et $\langle \rangle_t = \langle \rangle_e$. En d'autres termes, il est possible de faire plusieurs fois une expérience sur des systèmes identiques mais à des temps différents et en tirer une loi générale sur LE système qui nous préoccupe. Dès lors, un tel montage va rendre compte des corrélations temporelles en intensité entre les 2 sorties du cube semi-réfléchissant. Cette expérience a été pour la première fois introduite par Hanbury-Brown et Twiss en 1956 pour regarder les corrélations d'intensité d'étoiles doubles dans le ciel [10]. Il va s'avérer que cette expérience, initialement faite pour voir des corrélations classiques de la lumière, est au coeur d'un phénomène physique purement quantique appelé le dégroupement de photons ou **antibunching** en anglais. Par abus de langage, une expérience de mesures de corrélations de photons est aussi appelé expérience ou montage de Hanbury-Brown Twiss, encore raccourci en HBT.

A titre d'exemple, reprenons à présent les expressions (2.33) et (5.2) et appliquons les au cas de l'état de Fock $|n_{\vec{k}}\rangle$ à $n_{\vec{k}}$ photons dans le mode \vec{k} . On se souvient aussi que l'on associe les opérateurs de création et d'annihilation de photons au champ électrique ce qui va nous donner :

$$g^{(2)}(\zeta = 0) = \frac{\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | n \rangle}{\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a} | n \rangle^2} \quad (2.35)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{\langle n | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger | n - 2 \rangle}{(n \langle n | n \rangle)^2} \\ &= \frac{n(n-1)n}{n^2} \\ &= 1 - \frac{1}{n} \end{aligned} \quad (2.36)$$

où n est le nombre de photons dans le mode unique \vec{k} qui est considéré ici. On voit apparaître tout de suite le phénomène de dégroupement car si $n = 1$ alors $g^{(2)}(0) = 0$. Ce résultat ne peut pas se retrouver en optique classique où il est facile de démontrer que $g^{(2)}(0) \geq 1$.

2.1.4 Loi Poissonnienne du Laser

Démonstration avec les Mains

Nous allons à présent essayer de démontrer avec "les mains" que les photons émis par un laser suivent une statistique de Poisson.

Pour cela, considérons un faisceau laser de puissance constante P et de longueur d'onde $\lambda = c/\nu$ qui arrive sur un photodétecteur. Introduisons le flux de photons Φ tel que $\Phi = P/(h\nu)$ qui nous donne donc le nombre de photons par seconde. Dès lors, on peut en déduire que le nombre moyen de photons pendant un intervalle T est donné par $\bar{n} = \Phi T$. On supposera T assez grand pour que sa valeur soit bien connue.

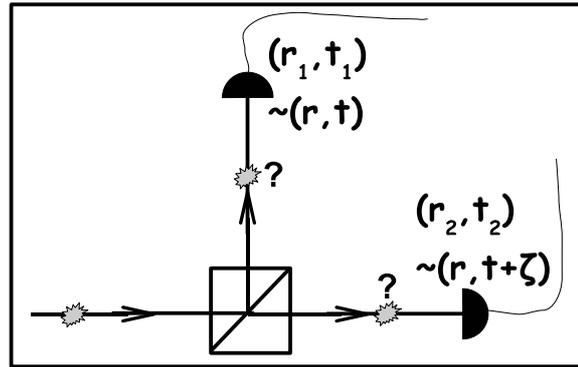


FIG. 2.3 – Expérience de corrélations de photons d'ordre 2 encore appelé montage de Hanbury-Brown et Twiss.

A présent, découpons l'intervalle de temps T en N sections égales, avec $N \gg 1$. Nous avons à présent N intervalles temporels, chacun de durée T/N . On supposera N tellement grand, donc des 'pixels' temporels T/N tellement petits, que la probabilité $p = \bar{n}/N$ d'avoir un photon est très petite et la probabilité d'en avoir deux ou plus est encore plus petite donc négligeable dans un seul pixel temporel T/N .

A présent, quelle est la probabilité d'observer n événements dans les N intervalles durant le temps d'acquisition T de l'expérience ? Pour la situation où l'on a des événements indépendants, ou autrement dit dans le cas où il n'y a pas d'effet de mémoire entre deux photons successifs, la probabilité sera tout simplement donnée par une distribution binomiale de la forme :

$$P(n) = \frac{N!}{n!(N-n)!} p^n (1-p)^{N-n} \quad (2.37)$$

Dans le cas où $N \rightarrow +\infty$ on peut montrer grâce à la formule de Stirling que $N!/(n!(N-n)!) \rightarrow 1$. De même dans de telles conditions on a :

$$\left(1 - \frac{\bar{n}}{N}\right)^{N-n} \rightarrow e^{-\bar{n}} \quad (2.38)$$

Finalement on peut en conclure que la statistique des photons pour une onde de lumière cohérente tel qu'un laser, avec un flux de photons moyen constant est donnée par une statistique de Poisson :

$$P(n) = \frac{\bar{n}^n}{n!} e^{-\bar{n}} \quad (2.39)$$

Ce résultat n'est pas très surprenant puisqu'en règle générale, la statistique de Poisson s'applique à des événements qui sont discrets (ce qui est bien le cas puisque la lumière est constitué de photons "insécables"), aléatoire (ce qui est aussi le cas puisque l'on ne sait pas à l'avance quand le détecteur va enregistrer un photon ou "cliquer") et dont la valeur moyenne doit être bien définie (c'est ce que nous avons supposé au départ pour la

puissance du laser).

Voilà une façon de montrer le caractère poissonnien des photons issus d'un laser. Dans la partie suivante, on va traiter ce même problème mais du point de vue de la mécanique quantique cette fois-ci.

Etats Cohérents de Glauber

Si l'on considère à nouveau un laser, ou "maser optique" qui était toujours le nom de l'époque des articles de Glauber en 1963, comme étant un oscillateur optique local alors on peut chercher des états $|\alpha\rangle$ tel que :

$$\hat{a}|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad (2.40)$$

$|\alpha\rangle$ représente alors un mode propre d'un oscillateur harmonique de valeur propre α associé à l'opérateur de destruction de photons \hat{a} . Le choix de cet état n'est évidemment pas anodin puisqu'il va permettre de faire le lien entre cohérence classique et cohérence quantique. En effet, si l'on cherche une expression du type de celle donnée par (2.40), cela revient en fait à chercher une expression de la forme :

$$\hat{E}^{(+)}(\vec{r}, t)|\cdot\rangle = e(\vec{r}, t)|\cdot\rangle \quad (2.41)$$

et de même on aura pour le complexe conjugué :

$$\langle\cdot|\hat{E}^{(-)}(\vec{r}, t) = \langle\cdot|e^*(\vec{r}, t) \quad (2.42)$$

Si l'on introduit ces relations dans l'expression (2.28), alors on peut factoriser et l'on trouvera que :

$$G^{(1)}(\vec{r}, t; \vec{r}, t) = e^*(\vec{r}, t) e(\vec{r}, t) \propto I(\vec{r}, t) \quad (2.43)$$

Il y a alors identification de l'intensité lumineuse avec la fonction $G^{(1)}$. on comprend dès lors tout l'intérêt de choisir un état $|\alpha\rangle$, dit état cohérent, tel que celui choisit dans l'expression (2.40).

Dès lors, par itérations successives, on peut montrer que :

$$|\alpha\rangle = e^{-1/2|\alpha|^2} \sum_n \frac{\alpha^n}{(n!)^{1/2}} |n\rangle \quad (2.44)$$

Le nombre d'occupation moyen de l'état n est alors donné par la distribution de Poisson de valeur moyenne $|\alpha|^2$:

$$|\langle n|\alpha\rangle|^2 = \frac{|\alpha|^{2n}}{n!} e^{-|\alpha|^2} \quad (2.45)$$

On retrouve bien la même expression qu'en (2.39) avec $\bar{n} = |\alpha|^2$.

Photons Laser et $g^{(2)}$

Reprenons à présent l'expression (2.34) de la mesure de $g^{(2)}(\zeta)$ mais cette fois-ci l'état considéré, donc la valeur moyenne quantique, se fera sur l'état cohérent du laser, c'est à dire l'état $|\alpha\rangle$. En utilisant (2.35) et (2.40), on a :

$$\begin{aligned}
 g^{(2)}(t, \tau) &= \frac{\langle \alpha | \hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger \hat{a} \hat{a} | \alpha \rangle}{\langle \alpha | \hat{a}^\dagger \hat{a} | \alpha \rangle^2} & (2.46) \\
 &= \frac{\alpha^* \alpha^* \alpha \alpha}{(\alpha^* \alpha)^2} \\
 &= \frac{|\alpha|^2 \cdot |\alpha|^2}{(|\alpha|^2)^2} \\
 &= 1
 \end{aligned}$$

Il ressort clairement sur ce calcul, que la fonction de corrélation normalisée d'ordre deux $g^{(2)}$ traduit bien des anticorrélations parfaites (détection d'événements indépendants) dans le cas d'une source cohérente et poissonnienne tel que le laser. Glauber a donc réussi à introduire une méthode de mesure de la cohérence d'un laser basée sur la mécanique quantique et non plus sur l'optique classique comme auparavant avant lui. Pour être complet, Roy Glauber a reçu cette année 2005 le prix Nobel de Physique pour "sa contribution à la théorie quantique de la cohérence optique" [11]. Ce prix montre bien à quel point celui que l'on appelle "le père de l'optique quantique" a été déterminant dans ce domaine de la physique.

2.2 Zoologie des Sources de Photons Uniques

2.2.1 Atomes et Ions

Cette partie sera consacré à un état des lieux des différentes sources de photons uniques qui existent à l'heure actuelle. Historiquement, l'atome a été le premier émetteur de photons dont la statistique est la conséquence directe de la quantification de la lumière.

La première expérience de dégroupement de photons a été réalisé en 1977 à l'Université de Rochester aux Etats-Unis [12]. Kimble, Dagenais et Mandel (qui depuis les années 60 a totalement embrassé le formalisme de Glauber) ont utilisé pour voir cet effet un jet dilué d'atomes de sodium pompés à la résonance par un laser. En excitant perpendiculairement au jet atomique et en ayant un jet atomique dans lequel le nombre d'atome est très petit par tranche temporelle d'enregistrement, les auteurs ont pu observer une courbe d'anticorrélation. Celle-ci n'était pas parfaite i.e. elle ne descendait pas à 0 au temps $t = 0$. Ceci est expliqué entre autre par le fait que les photons issus des atomes et les photons laser sont à la même énergie. Il y est donc difficile de discriminer la fluorescence résonante de la lumière laser. De plus, il y a toujours une probabilité d'avoir 2 atomes de sodium en même temps dans le petit volume d'interaction donné par la focalisation du laser. La figure 2.4 présente le schéma expérimental de cette expérience.

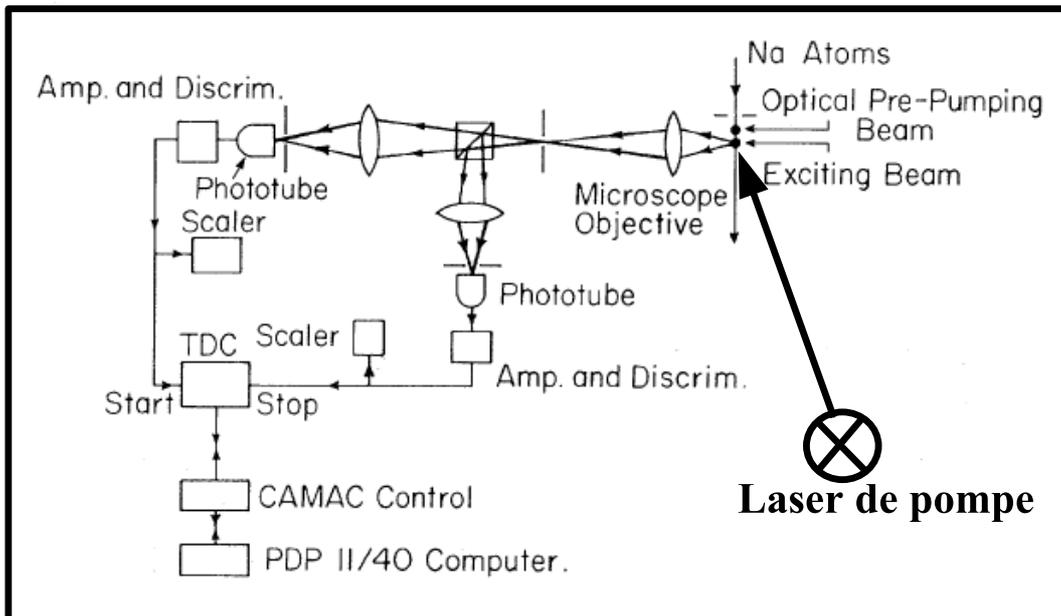


FIG. 2.4 – Schéma de l'expérience de dégroupement de photons par fluorescence résonante réalisé sur un jet dilué d'atomes de sodium, d'après [12].

Dix ans plus tard, le groupe de Herbert Walther à Munich effectua une expérience similaire mais cette fois-ci avec un ion unique Mg piégé assez longtemps dans un piège quadrupolaire électrique (encore appelé piège de Paul), l'idée étant que le jet d'ions passe à travers les électrodes formant le potentiel quadrupolaire nécessaire au piégeage des ions pendant la durée de l'expérience [13]. A nouveau, la courbe de dégroupement est visible avec un trou très net des événements coïncidents à $\zeta = 0$. Ce même groupe, 17 ans plus tard, obtiendra un résultat similaire mais cette fois-ci les photons sont générés de façon continue et contrôlés dans un piège de Paul combiné à une cavité optique résonante où un ion reste piégé pendant toute la durée de l'expérience [14].

Un atome unique piégé par l'onde stationnaire d'une cavité optique résonante a également permis de montrer que les photons émis étaient dégroupés. Les groupes de Rempe à Munich et de Kimble, professeur à Caltech depuis sa première mise en évidence du dégroupement à Rochester, ont tous les deux piégés un atome unique (rubidium pour le premier et césium pour le second) dans une cavité optique. Par des méthodes similaires de fontaine atomique, les deux équipes ont réussi à insérer régulièrement un et un seul atome dans la cavité. La fontaine servant à propulser les atomes dans l'air de façon à ce qu'ils aient une faible probabilité mais une certaine probabilité tout de même de retomber entre les miroirs de la cavité. Cette dernière est elle-même en résonance avec une transition bien précise de l'atome et va favoriser l'émission des photons de cette transition. Pour l'expérience de Munich, un piège magnéto-optique au-dessus de la cavité va relâcher les atomes un par un dans le résonateur optique. L'antibunching est alors observé en séparant en deux la lumière qui sort de la cavité [15, 16].

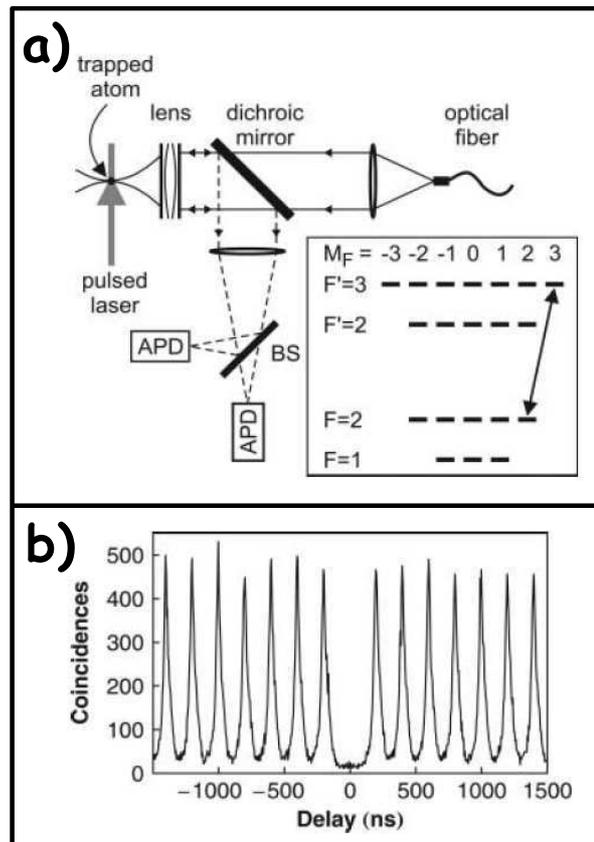


FIG. 2.5 – a) Montage de l’expérience de corrélations de photons émis par un atome unique piégé par un piège dipolaire. b) Résultat de dégroupement de photons obtenu pour un tel système, d’après [18].

Pour terminer, la dernière expérience de ce type est toute récente puisqu’elle a été publiée en juillet 2005 par le groupe de Philippe Grangier à l’Institut d’Optique d’Orsay, lui aussi responsable d’une expérience similaire 15 ans plus tôt [17]. Là encore, la signature d’anticorrélations d’un atome à 2 niveaux est très nette dans leur article [18]. Cette fois-ci, l’atome est piégé par piégeage dipolaire donc au foyer d’un laser focalisé. La fluorescence est collectée et envoyée dans un montage HBT comme à l’accoutumé et une électronique de coïncidences est utilisée ensuite pour enregistrer les données.

Il faut souligner que pour toutes ces expériences, le montage expérimental est généralement très conséquent, demandant beaucoup de main d’oeuvre et certainement pas développable aujourd’hui en dehors d’un laboratoire. Néanmoins ces expériences sont, ô combien déterminantes pour la compréhension des phénomènes physiques de la nature.

2.2.2 Photons Annoncés

Poursuivant toujours ses expériences d’optique quantique à l’Université de Rochester, Leonard Mandel trouva une autre source de photons uniques assez inattendue. En 1970,

Burham et Weinberg (du département d'électronique de la NASA!) mirent en évidence le phénomène de fluorescence paramétrique de photons [19]. Ce processus d'optique non-linéaire se produit lorsque l'on vient focaliser un laser, généralement impulsif (donc avec une très grande énergie par impulsion), dans un cristal biréfringent à forts coefficients non-linéaires. Le photon incident, appelé photon de pompe et d'énergie $\hbar\omega_p$ va alors se scinder en deux photons jumeaux, historiquement appelés signal et idler. Les conservations de l'énergie et de l'impulsion imposent que :

$$\hbar\omega_p = \hbar\omega_s + \hbar\omega_i \quad (2.47)$$

$$\hbar\vec{k}_p = \hbar\vec{k}_s + \hbar\vec{k}_i \quad (2.48)$$

La création de ces paires presque instantanément les rendent parfaitement corrélées temporellement. Hong et Mandel ont donc utilisé ces paires de photons jumeaux (séparés spatialement en champ lointain) pour démontrer que la simultanéité d'émission de ces paires pouvaient permettre de définir une source de photons uniques. Pour cela, ils ont utilisé un laser argon continu pour pomper un cristal non-linéaire de KDP. Chaque paire était ensuite envoyée vers des photomultiplicateurs qui eux mêmes convertissaient ces photons en signaux électriques [20].

Les photons de chaque paire étant séparés spatialement, il est facile d'utiliser un photon de la paire comme déclencheur sur un détecteur "annonçant" l'arrivée de l'autre photon de la paire sur l'autre détecteur. De cette façon, Hong et Mandel réussirent à montrer que les photons annoncés suivent une statistique subpoissonnienne comme l'aurait fait une source de photons uniques. D'où le nom de source de photons uniques annoncés.

Dans le même temps, Grangier, Roger et Aspect utilisèrent la même idée utilisant les paires de photons d'une cascade radiative atomique pour montrer que l'on pouvait réaliser des interférences à un photon. Un photon de la paire interfère avec lui même pendant que l'autre nous annonce quand "regarder" l'écran d'interférences. Au fur et à mesure que les impacts dues aux photons augmentent sur l'écran d'observation, la figure d'interférences se construit [21]. Toutefois, même si l'on peut avoir une source photons uniques grâce à ces photons jumeaux, nous ne pouvons pas faire de prédictions sur l'instant de création de ces paires. L'incertitude sur ce temps a été diminuée par l'utilisation de laser impulsif avec des largeurs d'impulsions de l'ordre de 100 *fs*. Néanmoins, dans de telles circonstances et pour des puissances pas trop grandes (de manière à ne pas créer des paires multiples de photons, ce qui serait catastrophique) l'incertitude se situe dans le fait que la plupart des impulsions sont vides de photons et que l'on ne sait pas quelle impulsion va nous donner un photon. La paire de photons à la demande n'est alors pas possible.

Plusieurs expériences ont montré que l'on pouvait se défaire de ce problème et notamment celles de Pittman et collaborateurs. Ils ont réussi à démontrer que l'on peut stocker l'un des photons de la paire dans une fibre optique et décider de le "libérer" lorsque bon nous semble. Ceci se fait à l'aide d'un modulateur électro-optique qui est déclenché par un photon de l'autre "bras" de la paire. La détection de ce photon va alors basculer le modulateur et le deuxième photon sera emprisonné simplement en se propageant dans la fibre en effectuant des cercles aussi longtemps que nécessaire [22]. La Fig 2.6 montre

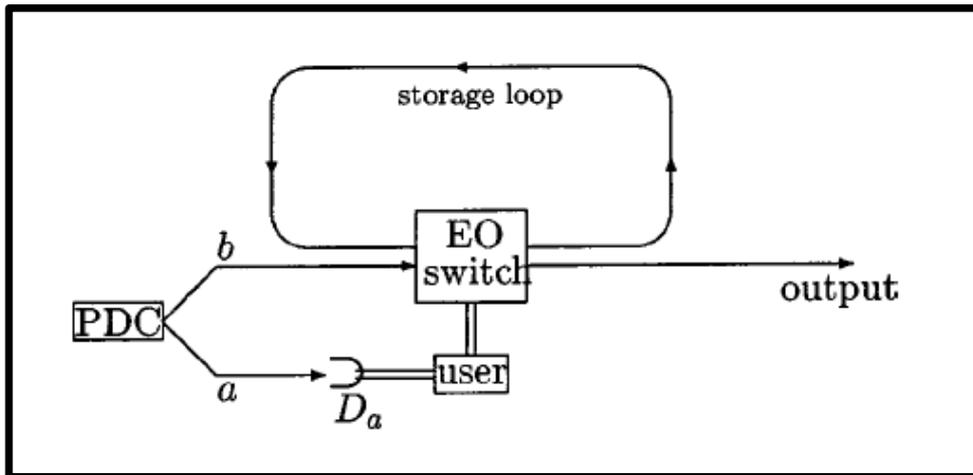


FIG. 2.6 – Expérience d’émission de photons uniques en pseudo-demande par stockage de photons de fluorescence paramétrique, d’après [22].

le principe expérimental de leur montage. PDC (pour Parametric Down-Conversion i.e. fluorescence paramétrique) est la source de photons jumeaux. Le photon a est détecté par l’utilisateur en comparaison du résultat du modulateur électro-optique (EO switch). Le stockage du photon b se faisant comme décrit plus haut.

L’état de l’art des photons uniques annoncés consiste plutôt aujourd’hui à trouver le matériau ou la technique qui nous donnera le plus de paires possible et donc de photons uniques possible. Récemment, des fibres à cristaux photoniques ont permis de produire ces paires de façon efficace. L’avantage des fibres est que l’optique est déjà toute faite et que l’on peut facilement brancher une fibre à un détecteur ou l’amener vers un autre montage. Alibart et al. [23] ont également démontré la très grande performance d’un guide dans un cristal de niobate de lithium quasi-accordé en phase. L’avantage d’un tel cristal et d’une telle technologie est qu’elle permet l’utilisation d’optique tout intégrée donc beaucoup plus facile d’emploi.

Pour terminer, il est important de noter que la création et l’étude de paires de photons sont certes importantes pour créer des photons uniques mais leur premier avantage et utilisation reste leur caractère dual, leur capacité à produire des paires de photons parfaitement corrélées en temps. Nous reviendrons sur ce point plus tard ; toutefois on peut déjà avancer que les photons jumeaux sont au coeur des sources de photons intriqués actuelles. Leurs applications pour les tests des inégalités de Bell, pour la cryptographie quantique et pour les protocoles d’ordinateur quantique sont de première importance.

2.2.3 Molécules

En 1992, Basché et al. ont réussi l’expérience de dégroupement mais sur une molécule unique cette fois-ci [24]. Contrairement aux atomes et aux ions, une molécule peut difficilement être refroidie par des techniques de refroidissement par laser. Cela est en partie

dû au fait qu'une molécule possède un grand nombre de degrés de libertés internes. L'approche des gens de cette collaboration entre IBM Almaden et Bordeaux était de "piéger" des molécules en tant qu'impuretés dans une matrice solide. Le tout refroidi à l'hélium liquide pour éviter que le solide lui-même ne vienne perturber la mesure à cause des phonons entre autre.

Par la suite, les travaux sur les molécules uniques se sont intensifiés. L'étude de l'émission spontanée d'une seule molécule "sandwichée" dans une cavité Fabry-Pérot a également été développé par De Martini et al. [25]. Ambrose et collaborateurs de Los Alamos National Laboratory ont eux mesuré la fonction $g^{(2)}$ d'une seule molécule de Rhodamine 6G (R6G) dispersée sur une lame de silice. La particularité de cette expérience est qu'elle s'est faite à température ambiante. Expérience d'ailleurs répétée par Lounis et Moerner en 2000 [27]. En régime impulsif, il a été démontré qu'une molécule pouvait fournir des photons à la demande, comme un "pistolet à photons" un an plus tôt par l'équipe de M. Orrit à Bordeaux [28].

Plusieurs autres groupes ont depuis démontré des résultats similaires et avec des conditions de travail similaires. On retiendra cependant l'utilisation d'un fin film de polymère pour piéger des molécules de térrylène dans l'expérience de Treussart et al. [29]. Le polymère en question est du PMMA de 10 *nm* d'épaisseur déposé par spin-coating sur une lame de verre. L'avantage du PMMA est que ce film protège la molécule de l'extérieur, ralentissant l'effet de photoblanchiment et que le PMMA est transparent. La technique est aussi très flexible dans le sens où l'on peut faire varier l'épaisseur du polymère et l'on peut insérer presque n'importe quelle molécule.

Pour finir, on remarquera que les molécules ont une tendance à clignoter i.e. à avoir des périodes où elles émettent de la lumière et des périodes où elles restent éteintes. Ce phénomène a pu être étudié en détails sur des molécules uniques [30] par Treussart et al. à nouveau. Ce clignotement n'est pas désirable si l'on veut contrôler exactement le flux de photons. De plus, les molécules ont tendance à photoblanchir c'est à dire à se dégrader et à ne plus émettre de lumière lorsque l'excitation laser est trop importante ou trop longue.

2.2.4 Nanocristaux

Les nanocristaux, parfois appelés boîtes quantiques colloïdales, sont l'équivalent des boîtes quantiques auto-assemblés mais fabriqués chimiquement cette fois-ci. La première expérience de corrélation de photons sur de tels émetteurs remonte à l'année 2000 à l'Université de Santa Barbara [31] par le groupe d'Imamoglu. A l'aide d'un montage type Hanbury-Brown Twiss une fois encore, l'équipe a pu démontré le caractère non-classique de la lumière émise par ces particules. Ces nanocristaux de CdSe dans ZnS étaient fabriqués par des méthodes organométalliques à très haute température [32, 33], de taille d'environ 4 à 5 *nm*. Ils sont ensuite dilués dans une solution de PMMA par exemple et parsemés comme les molécules sur la surface d'une lame de verre. L'avantage de ces nanocristaux est qu'ils émettent de la lumière à température ambiante. Cette expérience a été répétée par plusieurs groupes à Stanford [34] et Paris [35], le groupe de Paris ayant réalisé l'expérience en régime impulsif.

Les nanocristaux ont beaucoup d'avantages par rapport aux autres sources de photons uniques notamment celui d'être relativement facile à synthétiser et d'émettre de la lumière à température ambiante. Leur seul défaut est de clignoter ératiquement au cours du temps encore plus que les molécules. Ceci est une catastrophe pour bon nombre d'applications des sources de photons uniques contrôlées.

2.2.5 Centres Colorés

Avant de passer aux boîtes quantiques proprement dites, que nous avons utilisées comme émetteurs de photons uniques, il faut souligner l'importance de la dernière autre source sur le marché : les centres colorés dans le diamant.

L'idée est de simplement prendre partie du fait que le diamant peut avoir une impureté telle qu'un atome d'azote qui va venir s'insérer à côté d'une lacune dans la matrice cristalline du diamant. On appelle ces défauts, des centres NV pour **Nitrogen Vacancy**. Cela a pour conséquence l'émission de photons par un émetteur local piégé dans un réseau cristallin, tout comme une molécule unique dans un solide. Le gros avantage de ce centre est qu'il ne photoblanchit pas (ce qui n'est pas le cas de tout les centres colorés) et surtout qu'il n'a pas d'effet de clignotement ce qui est particulièrement appréciable. De plus, il émet de la lumière à température ambiante également ; il n'y a donc pas besoin de refroidir l'échantillon.

La première évidence d'antibunching avec de tels émetteurs a été faite par Kurtsiefer et al. à Munich en 2000 [36], suivit dans la même année par Brouri et al. [37]. Depuis, cette source a été énormément développée. Entre autre, il a été développé une technique pour obtenir des nanocristaux de 50 *nm* de taille ce qui simplifie grandement les montages optiques. On peut dès lors utiliser les mêmes techniques décrites pour les nanocristaux de dilution dans une solution par exemple.

Enfin, récemment, le groupe de Jörg Wrachtrup à Stuttgart a mis en évidence l'émission de photons à 800 *nm* avec une largeur spectrale relativement étroite (de l'ordre de 1 *nm*) en utilisant un autre dopant que l'azote appelé NE8 [38]. Ce résultat est très important puisque le seul mauvais point des centres NV jusqu'à présent était précisément que les largeurs spectrales de l'émission étaient toujours importante (de l'ordre de 50 *nm*). C'est mieux qu'auparavant mais il reste à présent à savoir si l'émission de photons reste cohérente pendant toute la durée de vie du centre. On verra l'importance de ce critère plus loin. Cela est le seul obstacle pour que cette source devienne LA source quasi-idéal de photons uniques.

On montrera que ce problème de largeur spectrale n'est pas présent pour les boîtes quantiques épitaxiées décrites dans ce manuscrit, du moins à basses températures, vers 5 *K* et en-dessous. Néanmoins, cela n'est plus valable à température ambiante. Le couplage avec les phonons du réseau va avoir tendance à élargir les largeurs d'émissions excitoniques des boîtes quantiques. Nous reviendrons sur ce point plus tard.

2.2.6 Boîtes Quantiques Epitaxiées Auto-Assemblés

Les détails de l'obtention, la croissance, les caractéristiques et la physique des boîtes quantiques seront repris au chapitre suivant. Dans cette partie, nous ne ferons que mentionner les résultats de mesures de corrélations obtenus avec de tels systèmes. Nous supposons donc qu'une boîte quantique est un émetteur capable d'émettre un et un seul photon à une énergie bien définie tout comme le ferait un atome ou une molécule unique, du moins tout comme le ferait une transition entre deux niveaux bien définis d'un atome ou d'une molécule.

La première expérience de photons uniques dans des boîtes uniques a été une fois encore faite par le groupe d'Imamoglu de l'Université de Santa Barbara en 2000 [39]. Depuis, la manifestation de dégroupement dans les boîtes a été vu maintes fois. Ce qui différencie chaque expérience est habituellement le matériau, la méthode d'excitation ou encore l'environnement. Pour exemple Imamoglu et collaborateurs utilisèrent des boîtes quantiques InAs dans GaAs de même que le groupe de Y. Yamamoto à l'Université de Stanford quelques mois plus tard [40]. Le groupe de Lund utilisèrent des boîtes d'InP [41]. Jean-Michel Gérard et collaborateurs montrèrent eux l'effet de corrélations croisées de la cascade radiative biexciton-exciton [7]. Michler et al. pour la première fois utilisèrent des matériaux de la famille des II-VI tel que CdSe dans ZnSe et en régime impulsif [18]. Tout récemment, des boîtes de GaN dans AlN émettant dans le proche UV à 350–355 nm ont aussi démontré qu'elles pouvaient émettre des photons uniques [44]. Nous reviendrons plus en détails sur ce type d'expériences effectuées sur notre montage dans le chapitre 5.

2.3 Indiscernabilité de 2 Photons

2.3.1 Approche Simpliste

Nous allons à présent démontrer une propriété encore plus troublante de l'optique quantique et qui est au coeur de l'article KLM mentionné au chapitre 1 [24]. Ce phénomène est appelé la coalescence de photons ou encore l'effet Hong-Ou-Mandel, après les premiers expérimentateurs à avoir montré cet effet. Cet effet n'étant en fait rien d'autre qu'un effet d'interférences à 2 photons.

Montrons tout d'abord que cet effet peut exister sur un exemple idéalisé. Pour cela, considérons le même montage que la Fig 2.1 avec les mêmes notations, la différence cette fois-ci étant que l'on envoie un photon dans chaque voie d'entrée du cube séparateur. Dès lors, on reprend le calcul de la partie 2.1.2 mais cette fois-ci avec l'état $|1_{e_1}1_{e_2}\rangle$ au départ au lieu de celui donné par (2.19). Les relations entre les modes d'entrées et de sorties restant les mêmes, i.e. la matrice de la figure 2.1 restant la même, on en déduit les états de sorties possibles des photons :

$$\begin{aligned} |1_{e_1}1_{e_2}\rangle &= \hat{a}_{e_1}^\dagger \hat{a}_{e_2}^\dagger |00\rangle \\ &= \frac{1}{2}(\hat{a}_{s_1}^\dagger + \hat{a}_{s_2}^\dagger)(\hat{a}_{s_1}^\dagger - \hat{a}_{s_2}^\dagger)|00\rangle \end{aligned} \quad (2.49)$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{2}(|2_{s_1}, 0_{s_2} \rangle + |1_{s_1}, 1_{s_2} \rangle - |1_{s_1}, 1_{s_2} \rangle + |0_{s_1}, 2_{s_2} \rangle) \\
 &= \frac{1}{2}(|2_{s_1}, 0_{s_2} \rangle + |0_{s_1}, 2_{s_2} \rangle)
 \end{aligned} \tag{2.50}$$

L'état du vide étant donné par $|000\dots\rangle = |00\rangle$ dans notre cas. La relation finale nous apprend que les états de sorties possibles des deux photons sont : 2 photons par la voie de sortie s_1 avec une probabilité $1/2$ OU 2 photons par la voie de sortie s_2 avec une probabilité $1/2$. Les termes pour lesquels les photons interfèrent destructivement s'annulent ensemble et la probabilité d'avoir un photon dans chaque mode de sortie du cube séparateur est nul. Ce phénomène est parfois appelé coalescence de photons par allusion au fait que les photons tendent à se coller ensemble pour sortir de la lame semi-réfléchissante. Bien évidemment, dans ce calcul, les photons sont supposés être dans le même mode optique que nous avons défini précédemment (voir section 2.1), donc avoir le même vecteur d'onde \vec{k} et la même polarisation. Deux polarisations différentes les rendraient discernables.

Ce modèle très simpliste est évidemment un cas idéal et ne peut pas représenter une réalité expérimentale. Par exemple, on a supposé que les deux photons arrivaient simultanément et se superposaient spatialement parfaitement au niveau du cube 50/50. Il convient de se poser la question suivante : comment quantifier ces paramètres de simultanéité et de superposition ? Un photon n'étant ni vraiment une particule représentée par un point de taille fini dans l'espace et n'étant pas vraiment une onde puisqu'il peut former un impact sur un écran photographique suffisamment sensible. Habituellement en mécanique quantique, la façon de représenter un photon est de dire qu'il s'agit d'un paquet d'ondes avec une certaine extension spatiale et une certaine largeur temporelle.

2.3.2 Cohérence et Temps de Vie

Avant de rentrer dans des considérations pratiques de critères de quantification de l'indiscernabilité des photons, il est nécessaire de bien se représenter un photon et de connaître ses propriétés. On verra que celles-ci sont dépendantes de l'émetteur qui les a créés.

Comme nous l'avons déjà vu dans la partie 2.1, la notion de cohérence est très importante en optique classique et quantique. Dans les deux cas, la définition de la cohérence est le "pouvoir" que possède un photon (pour le cas quantique) ou un champ électrique (pour le cas classique) à interférer avec lui même. Dans les deux cas, la cohérence est directement liée à la pureté spectrale des photons qui interfèrent. Reprenons pour illustrer cela l'expression de l'intensité lumineuse d'une source ponctuelle de lumière monochromatique de fréquence ν dans une expérience du type trous d'Young décrite par la figure 2.2. Dans ce cas, l'intensité lumineuse en sortie au point M sera donnée par le terme habituel d'un interféromètre à division d'amplitude :

$$I = 2I_0(1 + \cos \phi) \tag{2.51}$$

avec $\phi = 2\pi\nu\delta/c$ où δ représente la différence de marche des deux bras d'un interféromètre ou la différence de distance entre les 2 trous d'Young. Supposons à présent que la

source lumineuse au départ ne soit plus monochromatique mais quasi-monochromatique de fréquence moyenne ν_0 et caractérisée par son intensité spectrale qui est une fonction paire $i(\nu)$, centrée en ν_0 (et fonction de la fréquence). La contribution à l'intensité lumineuse totale en un point M de l'écran d'observation d'une bande spectrale infinitésimale, d'épaisseur $d\nu$, sera donnée par :

$$dI = 2.i(\nu)d\nu.[1 + \cos \phi] \quad (2.52)$$

L'intensité lumineuse totale en M sera la somme de toutes les contributions élémentaires précédentes puisque chaque bande spectrale est indépendante des autres :

$$\begin{aligned} I(\delta) = \int dI &= 2 \int_0^{+\infty} i(\nu)d\nu + 2 \int_0^{+\infty} i(\nu)d\nu \cos\left(\frac{2\pi\delta}{c}\nu\right) \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} i(\nu)d\nu + \int_{-\infty}^{+\infty} i(\nu)d\nu \cos\left(\frac{2\pi\delta}{c}\nu\right) \end{aligned} \quad (2.53)$$

la deuxième ligne étant la résultante du fait que la fonction est supposée paire. A présent, si l'on pose que $I_1 = \int i(\nu)d\nu$, on peut montrer que (2.53) se ramène à l'équation :

$$I(\delta) = I_1[1 + V(\delta). \cos\left(\frac{2\pi\delta}{c}\nu_0\right)] \quad (2.54)$$

avec V qui est appelé le facteur de visibilité ou tout simplement la visibilité. Cette expression est tout à fait similaire à celle donnée en (2.51). Toutefois à présent, la fonction cosinus sera enveloppée, modulée par la fonction visibilité $V(\delta)$. Cette visibilité est donnée par :

$$V(\delta) = \frac{1}{I_1} \int_{-\infty}^{+\infty} i(\nu - \nu_0).e^{j\frac{2\pi\delta}{c}(\nu - \nu_0)}.d\nu \quad (2.55)$$

Il apparaît que $V(\delta)$ est directement relié à l'intensité spectrale i donc à la pureté spectrale de l'émission. Dans le cas d'une fonction parfaitement monochromatique, i serait représentée par une fonction de Dirac et l'on aurait $V = 1$ (cf. (2.51)). L'équation précédente, appelé équation de Wiener, montre que la visibilité est en fait la transformation de Fourier de l'intensité spectrale $i(\nu - \nu_0)$ de la source primaire. Dans le formalisme du paquet d'ondes mentionné auparavant, cela veut dire que la fonction enveloppe du paquet d'onde sera en fait donnée par la visibilité V calculée plus haut. On notera que la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$ est parfois appelée le degré de cohérence temporelle (voir 2.1.3) du premier ordre et donnée par :

$$g^{(1)}(\zeta) = \frac{\langle \hat{E}^\dagger(t)\hat{E}(t + \zeta) \rangle}{\langle \hat{E}^\dagger(t)\hat{E}(t) \rangle} \quad (2.56)$$

En reprenant (2.55) et (2.56), on peut se convaincre que le facteur de visibilité V est de fait la transformée de Fourier de la fonction $g^{(1)}$:

$$V = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} g^{(1)}(\zeta)e^{j\omega\zeta}d\zeta \quad (2.57)$$

Dès lors, le calcul de la visibilité revient à calculer $g^{(1)}$ donc à calculer les fluctuations statistiques du champ électrique. Dans ce cas, il faut connaître le "passé" du photon émis, c'est à dire savoir dans quelles conditions il a été créé et connaître sa pureté spectrale.

Supposons pour cela que le photon soit émis par un atome parmi un nuage d'autres atomes identiques. Classiquement, cet atome va rayonner à la fréquence ν jusqu'à ce qu'il rentre en collision avec un autre atome. Durant le temps de la collision (extrêmement bref) le rayonnement sera interrompu puis reprendra après la collision dans les mêmes conditions qu'avant, c'est à dire à la même fréquence ν . Toutefois, il y a eut un saut de phase pendant la collision. L'onde émise, rayonnée, n'est plus en phase avec elle même avant la collision (on notera qu'un changement de vitesse des atomes induit aussi un effet Doppler mais que l'on peut négliger dans certains cas). Typiquement, les collisions se produisent après un certain temps caractéristique. Ce temps est le temps de déphasage noté T_2^* . Ce temps nous donne donc le temps moyen entre 2 sauts de phase de la lumière. Il existe une relation entre ce temps de déphasage et le temps de cohérence.

Afin de relier cela directement aux interférences, on a vu précédemment que la cohérence est lié à la possibilité qu'à un photon d'interférer avec lui-même. Le temps de cohérence ($T_2 = l_c/c$ où l_c est la longueur de cohérence) est bien le temps durant lequel les photons peuvent interférer entre eux. Ce temps étant relié au spectre de l'émission par transformation de Fourier, il nous suffit simplement de savoir quelle est l'élargissement spectral pour connaître T_2 .

Habituellement, dans le cas d'un élargissement homogène dû aux collisions, on peut montrer que le profil spectral est une fonction de Lorentz qui a pour transformée de Fourier une fonction exponentielle décroissante. La visibilité V sera alors de la forme :

$$V(\zeta) = e^{-\frac{\zeta}{T_2}} \quad (2.58)$$

Nous avons à présent défini en détails le temps de cohérence d'un photon émis par une transition radiative donnée. Il faut à présent comparer ce temps à un autre temps caractéristique du système à l'étude : sa durée de vie T_1 .

En effet, un atome excité aura une probabilité qui décroît exponentiellement avec le temps d'émettre un photon. Autrement dit, la probabilité que l'atome reste dans son état excité est une fonction qui décroît exponentiellement. Intuitivement, si à $t = 0$ on fait passer un atome (supposé à 2 niveaux pour simplifier) de son niveau fondamental à son premier niveau excité, après un temps d'attente suffisamment long, on sera sûr que le photon aura été émis. La probabilité $p_{e \rightarrow f}$ de désexcitation du niveau excité est alors donné par :

$$p_{e \rightarrow f} = e^{-\frac{t}{T_1}} \quad (2.59)$$

Dans le cas idéal, lorsqu'il n'y a pas de collisions par exemple, un train d'onde, un photon, ne subit aucun saut de phase durant toute la durée de vie de la transition qui l'a créée et alors :

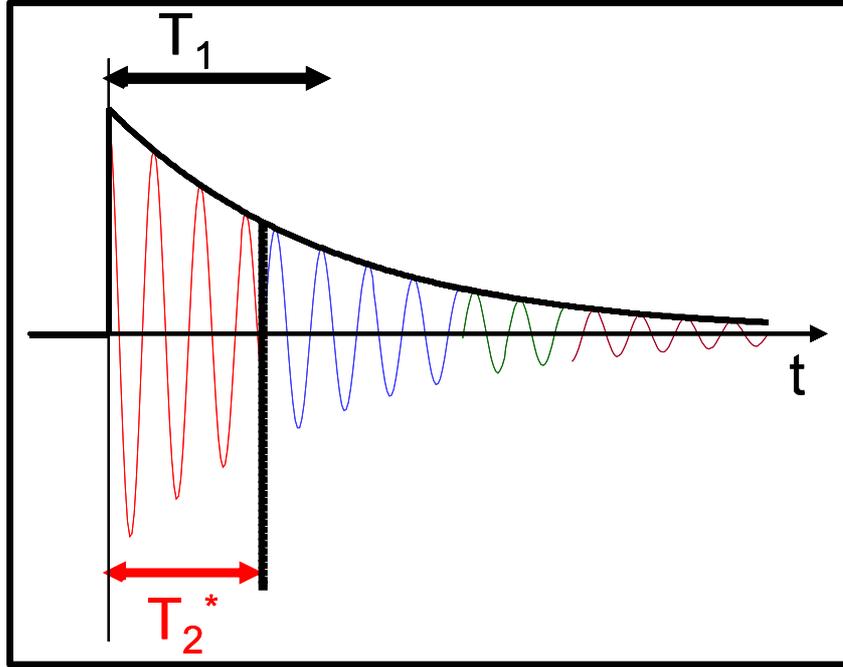


FIG. 2.7 – Représentation des temps caractéristiques de la décroissance exponentielle d'une transition radiative, soumise à des déphasages tous les T_2^* en moyenne.

$$T_2 = 2.T_1 \quad (2.60)$$

Le facteur 2 provenant du fait que l'on considère que l'atome se désexcite vers son état fondamental. Dans ce cas, l'élargissement spectral de la transition n'est dû qu'à la durée de vie du niveau excité et non pas à d'autres phénomènes. Mentionnons que dans le cas d'un élargissement Doppler (due à la distribution gaussienne des vitesses des atomes dans le nuage), les fonctions mises en jeu sont gaussiennes et non plus lorentziennes. En général, puisque $T_2 \leq 2.T_1$, on introduit le temps de déphasage T_2^* comme rendant compte de tous les mécanismes de décohérence, i.e. de déphasage. La relation entre ces trois valeurs est donnée par :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (2.61)$$

La figure 2.7 représente la décroissance exponentielle d'une transition radiative en un temps T_1 soumise à des déphasages tous les T_2^* en moyenne.

Cette figure illustre bien l'émission d'un niveau atomique excité dont l'atome va subir un saut de phase (due à une collision par exemple) pendant des temps plus court que le temps de recombinaison radiative T_1 . Dans cet exemple précis, l'atome subit 3 collisions avant d'avoir une probabilité d'émission d'un photon très faible aux temps longs.

2.3.3 Approche Réaliste

Dans la partie 2.3.1 nous avons vu une façon idéaliste, de démontrer l'effet de coalescence de photons. Toutefois, un photon est représenté concrètement par un paquet d'onde avec une largeur bien déterminée comme il a été discuté précédemment. La première question à se poser sur l'exemple de 2.3.1 est jusqu'à quel point l'on peut retarder temporellement le photon d'une entrée et toujours observer l'effet. Au bout d'un certain temps, le retard sera tellement grand entre un photon par rapport à l'autre que leurs paquets d'ondes ne vont plus du tout se superposer sur la lame et la coalescence n'aura plus lieu.

De même, la coalescence étant lié à la "monomodicité" des photons générés, cela sous-entend que tous les photons sont dans le même mode de vecteur d'onde \vec{k} . Spectralement, cela veut dire que les photons doivent être le plus monochromatique possible car monochromaticité=pureté spectrale=meilleure indiscernabilité donc meilleure coalescence. Or nous venons de voir dans la partie 2.3.2 que la pureté spectrale était directement lié au temps de cohérence, donc aux propriétés de paquets d'ondes des photons. Nous venons là de définir un critère précis de qualité d'indiscernabilité basé sur le simple fait que la coalescence disparaît lorsque les deux paquets d'ondes des photons incidents dans chaque port d'entrée du cube ne se superposent plus. Nous avons à présent un critère expérimental précis pour mesurer l'indiscernabilité de deux photons.

Jusqu'en 2002-2003, les seuls travaux théoriques sur le sujet était basés sur des expériences de photons jumeaux avec naturellement de très fortes corrélations spectrales, temporelles et spatiales [46, 47]. Toutefois, il manquait un formalisme qui traite le cas de photons provenant de deux sources parfaitement indépendantes comme deux atomes à deux niveaux à chaque bout d'une salle de laboratoire. Pour cela Bylander et al. [48] sont partis de l'hamiltonien classique dit de Jaynes-Cummings qui traduit simplement le passage d'un système à 2 niveaux de son état fondamental à son premier état excité. A cet hamiltonien, ils ont rajouté un hamiltonien traduisant les fluctuations aléatoires que subit la phase du système. Cet hamiltonien est modélisé par une force de Langevin représentant un processus stochastique stationnaire. Quantiquement, ils utilisent le point de vue d'interaction pour dire que la fluctuation de phase de l'atome est transmise au photon émis.

De là, ils calculent la fonction d'ordre deux $g^{(2)}$ donnée par (5.2) à la sortie d'une lame semi-réfléchissante comme nous l'avons fait dans la partie 2.3.1. Pour une lame parfaitement 50/50, la fonction de corrélation est donnée par :

$$g^{(2)}(\delta\zeta) = 1 - \frac{T_2}{2T_1} e^{-2|\delta\zeta|/T_2} - \frac{T_2^*}{2T_1} (e^{-|\delta\zeta|/T_1} - e^{-2|\delta\zeta|/T_2}) \quad (2.62)$$

On retrouve dans cette expression les trois temps caractéristiques importants pour une telle expérience. $\delta\zeta$ représente l'écart temporel des deux paquets d'ondes sur la lame 50/50 et en particulier lorsque l'on se place à retard nul $\delta\zeta = 0$, on a :

$$g^{(2)}(0) = 1 - \frac{T_2}{2T_1} = 1 - P \quad (2.63)$$

où $P = T_2/2T_1$ représente alors un bon critère pour mesure le degré d'indiscernabilité. Ce résultat nous apprend que pour $T_2 = 2T_1$, $P = 1$ et dès lors $g^{(2)}(0) = 0$ i.e. une indiscernabilité totale. Toutefois, nous verrons que ce critère $P = 1$ n'est pas du tout facile à atteindre.

2.3.4 Effet Hong-Ou-Mandel

Expérience Originale

En 1987, l'équipe de Leonard Mandel à nouveau fut la première à montrer cet effet de coalescence de photons [23]. Hong, Ou et Mandel ont utilisé pour cela un cristal de KDP pompé par un laser UV. Les paires de photons jumeaux créées par fluorescence paramétrique (voir aussi partie 2.2.2) sont envoyées sur un cube équi-séparateur (BS sur la figure) et des détecteurs de photons uniques (D1 et D2 sur la figure) enregistrent ensuite les coïncidences en détection à la sortie de chaque bras du cube.

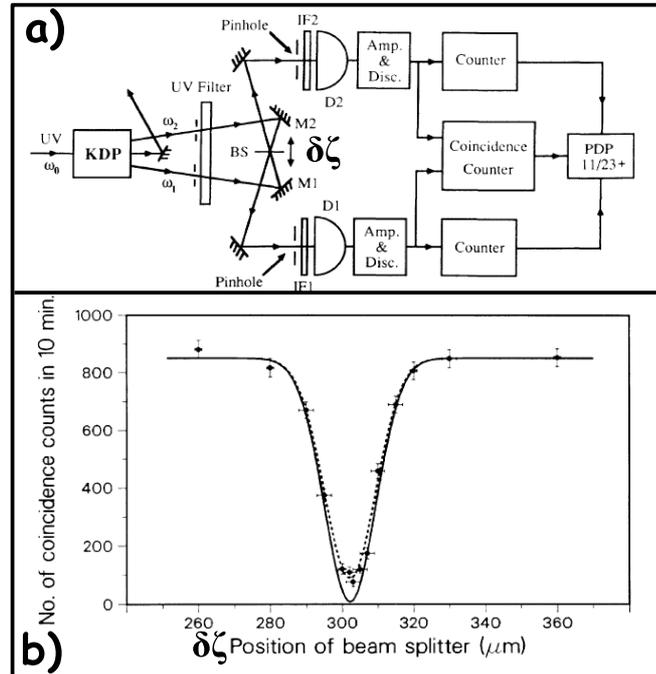


FIG. 2.8 – Expérience de Hong-Ou-Mandel de coalescence de photons produits par fluorescence paramétrique. D'après [23].

La Fig 2.8-a) présente le montage expérimental avec le retard variable $\delta\zeta$ qui se fait ici en bougeant le cube. La Fig 2.8-b) montre le résultat des coïncidences obtenues en fonction de ce retard $\delta\zeta$, en fonction de la position de la lame semiréfléchissante. On

notera que dans cette d'expérience la largeur du creux est donnée par le filtrage spectral imposé par les expérimentateurs.

Autres Résultats Purement Optiques

Depuis cette expérience, bon nombre d'autres groupes ont reproduit ce résultat d'une façon variable. Rarity et al. en Angleterre ont reproduit le même résultat dans la foulée du groupe de Rochester [50] avec un dispositif très similaire. En 2003 à Genève, l'équipe de N. Gisin a réussi à montrer cet effet avec deux photons provenant de la création de deux paires différentes [51]. Un laser de pompe est séparé en deux faisceaux, chacun pompant un cristal non-linéaire qui va produire des paires de photons aléatoirement de son côté. Un des photons de chaque paire est ensuite envoyé sur une lame 50/50 et se servant du laser d'excitation comme d'une horloge, de Riedmatten et al. regardent les événements coïncidents en sortie du cube. Ils arrivent à observer l'effet de coalescence dans ce cas.

Dans la même période, Pittman et Franson de John Hopkins University ont montré l'effet Hong-Ou-Mandel entre des photons laser et des photons de paires créées par fluorescence paramétrique [52]. Avant de créer les paires de photons à 780 nm, Pittman et al. ont besoin de doubler leur laser de 780 nm pour avoir 390 nm. La lumière doublée va créer des paires de photons jumeaux dans un autre cristal non-linéaire à 780 nm cette fois-ci. Ensuite, les auteurs recombinent un photon de la paire directement avec un photon laser du départ puisqu'à présent tous les photons mis en jeu ont la même longueur d'onde. L'autre photon jumeau de la paire sert à déclencher la fenêtre d'observation pour être sur de regarder au bon moment comme dans le cas de de Riedmatten et collaborateurs.

Pour finir, on citera à nouveau les expériences de téléportation quantique et d'échange d'enchevêtrement du groupe de Anton Zeilinger dont nous avons déjà parlé dans la section 1.2.1 [53, 54]. Même si ces expériences ne sont pas une illustration directe du principe de coalescence, elles sont fortement reliées à ce phénomène. Une bonne illustration a été démontré par le groupe de Bouwmeester de L'université de Santa Barbara qui a fait la preuve du paradoxe de Hardy [56] en utilisant la photonique et l'effet Hong-Ou-Mandel [55].

Démonstration avec un Atome, une Molécule et ... avec une Boîte Quantique

Historiquement les premières observations de l'effet Hong-Ou-Mandel se sont faites avec des paires de photons jumeaux mais depuis quelques années, d'autres sources de photons indiscernables sont apparu sur le marché.

En fait l'effet de coalescence a été vu en premier avec des boîtes quantiques. Yamamoto et collaborateurs de l'Université de Stanford ont démontré la coalescence de photons des boîtes quantiques de InAs dans GaAs qui étaient pour cela insérées dans une microcavité optique [57]. Par effet Purcell, le taux d'émission spontanée de l'exciton dans la boîte quantique est accéléré [5]. L'idée dans une telle situation est de baisser le temps de vie T_1 pour se rapprocher le plus possible de $2T_2$ et donc avoir un facteur $P = T_1/2T_2$ le

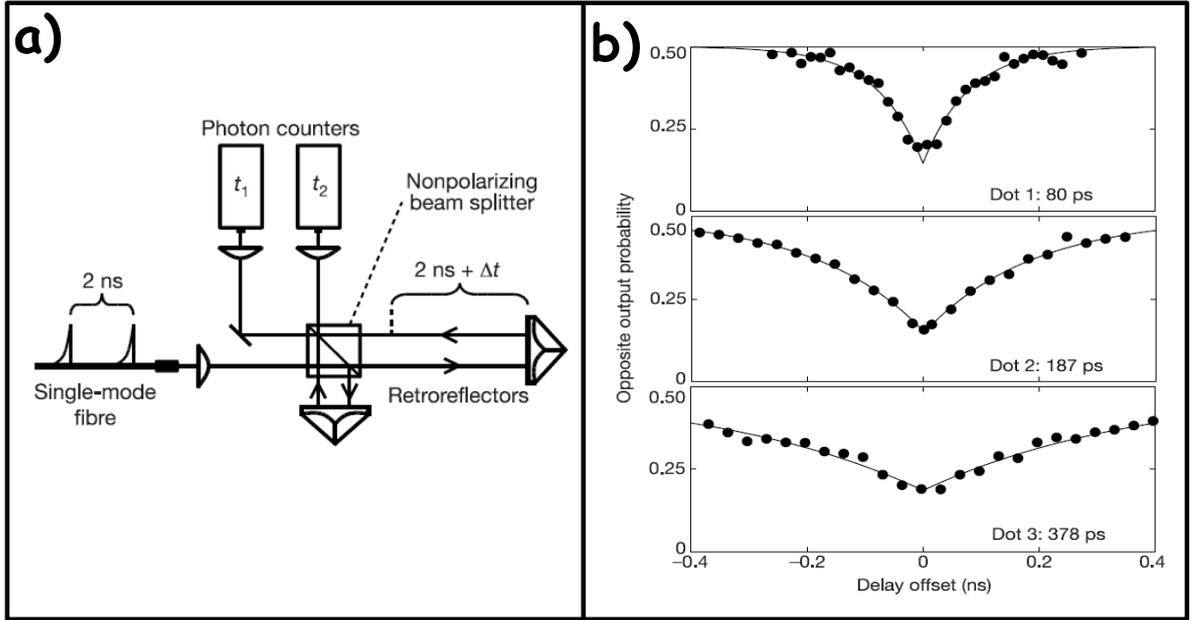


FIG. 2.9 – a) Montage de l'expérience de Hong-Ou-Mandel réalisée avec une boîte quantique dans une microcavité. b) Résultats de la coalescence sur 3 BQs différentes. D'après [57].

plus proche de 1 possible (voir plus haut). La Fig 2.9-a) montre le schéma expérimental mis en place par Santori et al. [57]. Toutes les 12 ns deux impulsions laser séparées de 2 ns excitent une boîte sélectionnée donc une transition radiative sélectionnée. A l'aide d'un interféromètre de Michelson, dont un bras est retardé de précisément 2 ns, 2 photons successifs émis par la boîte sont superposés sur un cube 50/50. La Fig 2.9-b) montre les résultats obtenus pour 3 boîtes quantiques différentes. Des facteurs de visibilité de 80% ont pu être observés. Pareillement avec leur montage expérimental, Santori et al. mesurent le temps de cohérence T_2 des transitions impliquées. Les valeurs de T_1 et de T_2 qu'ils mesurent sont bien en accord avec la théorie développée précédemment. Pour la boîte quantique appelée 2 par exemple, ils trouvent une valeur de $T_1 = 166 ps$ et une valeur de $T_2 = 223 ps$ d'où $g^{(2)} \approx 33\%$ ce qui correspond relativement bien au résultat trouvé d'après la figure 2.9-b). La valeur de $\tau_m = 187 ps$ est en fait un ajustement exponentielle en $e^{-|t|/\tau_m}$ de la courbe.

Cette expérience a depuis de nouveau été faite par Abram et collaborateurs [59] dans un système tout à fait similaire mais aussi encore plus récemment avec une boîte quantique dans un cristal photonique 2D [16]. Ce même groupe avait développé la théorie décrite en partie 2.3.3 et, tout comme pour le groupe de Stanford, les accords entre T_2 , T_1 et facteur de discernabilité P sont plutôt corrects. De leurs valeurs de temps de cohérence et de temps, ils peuvent en déduire le temps de déphasage T_2^* via l'équation (2.61). La valeur trouvée est à nouveau en bon accord avec une valeur expérimentale mesurée auparavant directement par mélange à quatre ondes [6].

Une autre preuve d'indiscernabilité des photons a été faite par un atome piégé par

l'onde stationnaire d'une cavité optique en couplage fort. En effet, à l'aide d'un piège magnéto-optique, le groupe de Gerhard Rempe à Munich relâche un et un seul atome dans une cavité [62]. Cette dernière, sous certaines conditions, va piéger cet atome et un système quasi-parfait atome à 2 niveaux/cavité est formé. Ensuite, impulsionnellement, ils excitent à intervalles réguliers l'atome piégé qui va lui aussi émettre des photons à intervalles réguliers. En sortie, le train de photons uniques est séparé en deux par un cube polariseur dont une branche est retardée de telle façon que deux photons successifs se recombinent sur une lame 50/50 pour avoir la coalescence. Le résultat de cette équipe du Max Planck Institut de Munich donne une visibilité de presque 100% dans ce cas, ce qui est tout à fait remarquable.

Tout récemment en 2005, L'effet de coalescence a aussi été observé sur une molécule unique [63]. L'expérience effectuée sur plusieurs jours et à 1.4 K montre une visibilité de 60%. Toutefois la simplicité d'utilisation et des méthodes mises en action est à noter à côté d'un montage extrêmement lourd comme celui de Rempe. Dans l'article, les auteurs concluent que la faible visibilité de l'effet pourrait s'améliorer par l'incorporation de la molécule dans un verre. Ce système est attractif mais il ne faut toutefois pas oublier que les molécules ont tendances à clignoter et à photoblanchir au bout d'un certain temps, comme déjà mentionné dans la partie 2.2.3.

Pour conclure, l'une des questions qui peut être posée pour l'utilisation des boîtes quantiques semiconductrices de la famille des II-VI serait : Sont-elles plus appropriées que les boîtes quantiques III-V? Cette question est légitime puisque l'on verra dans le chapitre 3 que la durée de vie T_1 des BQs II-VI est presque 5 à 7 fois plus petite que les BQs III-V. Typiquement, les temps donnés dans la Fig 2.9 pour une boîte III-V en cavité (donc avec un effet Purcell d'accélération de l'émission) sont de l'ordre des temps de vie d'une boîte II-VI SANS cavité. Nous reviendrons plus en détails sur ces considérations dans la suite de ce manuscrit.

Bibliographie

- [1] *The Quantum Theory of Light.*
R. Loudon, Oxford University Press, 2nd Edition (1983).
- [2] *On the Law of Distribution of Energy in the Normal Spectrum.*
M. Planck, Ann. der Phys. **4**, 553 (1901).
- [3] *Introduction to Quantum Electrodynamics.*
C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, et G. Grynberg, Wiley-Interscience, (1989).
- [4] *The Quantum Theory of the Emission and Absorption of Radiation.*
P.A.M. Dirac, Proc. Roy. Soc. A **114**, 243 (1927).
- [5] *Quantum Theory of Radiation.*
E. Fermi, Rev. Mod. Phys. **4**, 87 (1932).
- [6] *Photon Correlations.*
R.J. Glauber, Phys. Rev. Lett. **10**, 84 (1963).
- [7] *The Quantum Theory of Optical Coherence.*
R.J. Glauber, Phys. Rev. **130**, 2529 (1963).
- [8] *Coherent and Incoherent States of the Radiation Field.*
R.J. Glauber, Phys. Rev. **131**, 2766 (1963).
- [9] *Correlation in the fluctuating outputs from two square-law detectors illuminated by light of any state of coherence and polarization.*
L. Mandel, et E. Wolf, Phys. Rev. **124**, 1696 (1961).
- [10] *Correlation between photons in two coherent beams of light.*
R. Hanbury-Brown, et R.Q. Twiss, Nature **177**, 27 (1956).
- [11] <http://nobelprize.org/physics/laureates/2005/index.html>
- [12] *Photon antibunching in resonance fluorescence.*
H.J. Kimble, M. Dagenais, et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **39**, 691 (1977).
- [13] *Nonclassical radiation of a single stored ion.*
F. Diedrich, et H. Walther, Phys. Rev. Lett. **58**, 203 (1987).
- [14] *Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system.*
F. Diedrich, et H. Walther, Nature **431**, 1075 (2004).
- [15] *Deterministic single-photon source for distributed quantum networking.*
A. Kuhn, M. Hennrich, et G. Rempe, Phys. Rev. Lett. **89**, 67901 (2002).

- [16] *Experimental realization of a one-atom laser in the regime of strong coupling.*
J. McKeever, A. Boca, A.D. Boozer, J.R. Buck, et H.J. Kimble, *Nature* **425**, 268 (2003).
- [17] *Observation of photon antibunching in phase-matched multiatom resonance fluorescence.*
P. Grangier, G. Roger, A. Aspect, A. Heidmann, et S. Reynaud, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 687 (1986).
- [18] *Controlled single-photon emission from a single trapped two-level atom.*
B. Darquié, M.P.A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Meslin, A. Browaeys et P. Grangier, *Science* **309**, 454 (2005).
- [19] *Observation of Simultaneity in Parametric Production of Optical Photon Pairs.*
D.C. Burnham, et D.L. Weinberg, *Phys. Rev. Lett.* **25**, 84 (1970).
- [20] *Experimental Realization of a Localized One-Photon State.*
C.K. Hong, et L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 58 (1986).
- [21] *Experimental Evidence for a Photon Anticorrelation Effect on a Beam-Splitter : a New Light on Single-Photon Interferences.*
P. Grangier, G. Roger, et A. Aspect, *Europhys. Lett.* **1**, 173 (1986).
- [22] *Single photons on pseudodemand from stored parametric down-conversion.*
T.B. Pittman, B.C. Jacobs, et J.D. Franson, *Phys. Rev. A* **66**, 42303 (2002).
- [23] *High-performance guided-wave asynchronous heralded single-photon source.*
O. Alibart, D.B. Ostrowsky, P. Baldi, et S. Tanzilli, *Opt. Lett.* **30**, 1539 (2005).
- [24] *Photon Antibunching in the Fluorescence of a Single Dye Molecule Trapped in a Solid.*
Th. Basché, W.E. Moerner, M. Orrit, et H. Talon, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1516 (1992).
- [25] *Single-Mode Generation of Quantum Photon States by Excited Single Molecules in a Microcavity Trap.*
F. De Martini, G. Di Giuseppe, et M. Marrocco, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 900 (1996).
- [26] *Fluorescence antibunching from single molecules on a surface.*
W.P. Ambrose, P.M. Goodwin, J. Enderlein, D.J. Semin, J.C. Martin, et R.A. Keller, *Chem. Phys. Lett.* **269**, 365 (1997).
- [27] *Single photons on demand from a single molecule at room temperature.*
B. Lounis, et W.E. Moerner, *Nature* **407**, 491 (2000).
- [28] *Triggered Source of Single photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence.*
C. Brunel, B. Lounis, P. Tamarat, et M. Orrit, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2722 (1999).
- [29] *Triggered Source of Single photons based on Controlled Single Molecule Fluorescence.*
F. Treussart, A. Clouqueur, C. Grossman, et J.F. Roch, *Opt. Lett.* **26**, 1504 (2001).
- [30] *Direct Measurement of the Photon Statistics of a Triggered Single photon Source.*
F. Treussart, R. Alléaume, V. Le Floch, L.T. Xiao, J.M. Courty, et J.F. Roch, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 93601 (2002).
- [31] *Quantum correlation among photons from a single quantum dot at room temperature.*
P. Michler, A. Imamoglu, M.D. Mason, P.J. Carson, G.F. Strouse, et S.K. Buratto, *Nature* **406**, 968 (2000).

-
- [32] *Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E=S, Se, Te) semiconductor nanocrystallite.*
C.B. Murray, D.J. Norris, et M.G. Bawendi, J. Am. Chem. Soc. **115**, 8706 (1993).
- [33] *Synthesis and characterization of strongly luminescing ZnS-capped CdSe nanocrystals.*
M.A. Hines, et P. Guyot-Sionnest, J. Phys. Chem. **100**, 468 (1996).
- [34] *Photon antibunching in single CdSe/ZnS quantum dot fluorescence.*
B. Lounis, H.A. Bechtel, D. Gerion, P. Alivisatos, et W.E. Moerner, Chem. Phys. Lett. **329**, 399 (2000).
- [35] *Bunching and antibunching in the fluorescence of semiconductor nanocrystals.*
G. Messin, J.P. Hermier, E. Giacobino, P. Desbiolles, et M. Dahan, Opt. Lett. **26**, 1891 (2001).
- [36] *Stable Solid-Source of Single Photons.*
C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, et H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. **85**, 290 (2000).
- [37] *Photon antibunching in the fluorescence of individual color centers in diamond.*
R. Brouri, A. Beveratos, J.P. Poizat, et P. Grangier, Opt. Lett. **25**, 1294 (2000).
- [38] *Stable single-photon source in the near infrared.*
T. Gaebel, I. Popa, A. Gruber, M. Domhan, F. Jelezko, et J. Wrachtrup, New. J. Phys. **6**, 98 (2004).
- [39] *A Quantum Dot Single-Photon Turnstile Device.*
P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W.V. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, et A. Imamoglu, Science **290**, 2282 (2000).
- [40] *Triggered Single Photons from a Quantum Dot.*
C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, et Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **86**, 1502 (2001).
- [41] *Single quantum dots emit single photons at a time : Antibunching experiments.*
V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.E. Pistol, L. Samuelson, et G. Björk, App. Phys. Lett. **78**, 2476 (2001).
- [42] *Quantum Cascade of Photons in Semiconductor Quantum Dot.*
E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.M. Gérard, et I. Abram, Phys. Rev. Lett. **87**, 183601 (2001).
- [43] *Single-photon of CdSe quantum dots at temperatures up to 200K.*
K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, et A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **81**, 2920 (2002).
- [44] *Photon correlation studies of single GaN quantum dots.*
C. Santori, S. Götzinger, Y. Yamamoto, S. Kako, K. Hoshino, et Y. Arakawa, Appl. Phys. Lett. **87**, 51916 (2005).
- [45] *A scheme for efficient quantum computation with linear optics.*
E. Knill, R. Laflamme, et G.J. Milburn, Nature **409**, 46 (2001).
- [46] *Quantum theory of fourth-order interference.*
Z.Y. Ou, Phys. Rev. A **37**, 1607 (1988).

- [47] *Theory of two-photon interference.*
H. Fearn, et R. Loudon, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 917 (1989).
- [48] *Interference and correlation of two independent photons.*
J. Bylander, I. Robert-Philip, et I. Abram, Eur. Phys. J. D **22**, 295 (2003).
- [49] *Measurement of Subpicosecond Time Intervals between Two Photons by Interference.*
C.K. Hong, Z.Y. Ou, et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **59**, 2044 (1987).
- [50] *Fourth-order interference in parametric downconversion.*
J.G. Rarity, et P.R. Tapster, J. Opt. Soc. Am. B **6**, 1221 (1989).
- [51] *Quantum interference with photons pairs created in spatially separated sources.*
H. de Riedmatten, I. Marcikic, W. Tittel, H. Zbinden, et N. Gisin, Phys. Rev. A **67**, 22301 (2003).
- [52] *Violation of Bell's Inequality with Photons from Independent Sources.*
T.B. Pittman, et J.D. Franson, Phys. Rev. Lett. **90**, 240401 (2003).
- [53] *Experimental Quantum Teleportation.*
D. Bouwmeester, J.W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter, et A. Zeilinger, Nature **390**, 575 (1997).
- [54] *Experimental Entanglement Swapping : Entangling Photons that Never Interacted.*
J.W. Pan, D. Bouwmeester, H. Weinfurter, et A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett. **80**, 3891 (1998).
- [55] *Realization of Hardy's Thought Experiment with Photons.*
W.T.M. Irvine, J.F. Hodelin, C. Simon, et D. Bouwmeester, Phys. Rev. Lett. **95**, 30401 (2005).
- [56] *Quantum mechanics, local realistic theories, and Lorentz-invariant realistic theories.*
L. Hardy, Phys. Rev. Lett. **68**, 2981 (1992).
- [57] *Indistinguishable photons from a single-photon device.*
C. Santori, D. Fattal, J. Vuckovic, G.S. Solomon, et Y. Yamamoto, Nature **419**, 594 (2002).
- [58] *Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies.*
E.M. Purcell, Phys. Rev. **69**, 681 (1946).
- [59] *Restoration of photon indistinguishability in the emission of a semiconductor quantum dot.*
S. Varoutsis, S. Laurent, P. Kramper, A. Lemaître, I. Sagnes, I. Robert-Philip, et I. Abram, Phys. Rev. B **72**, 41303 (2005).
- [60] *Indistinguishable single photons from a single-quantum dot in a two-dimensional photonic crystal cavity.*
S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaître, I. Sagnes, F. Raineri, A. Levenson, I. Robert-Philip, et I. Abram, Appl. Phys. Lett. **87**, 163107 (2005).
- [61] *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots.*
P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R.L. Sellin, D. Ouyang, et D. Bimberg, Phys. Rev. Lett. **87**, 157401 (2001).

-
- [62] *Quantum Beat of Two Single Photons.*
T. Legero, T. Wilk, M. Hennrich, G. Rempe, et A. Kuhn, Phys. Rev. Lett. **93**, 70503 (2004).
- [63] *Indistinguishable Photons from a Single Molecule.*
A. Kiraz, M. Ehrl, Th. Hellerer, Ö.E. Müstecaplioglu, C. Bräuchle et A. Zumbusch, Phys. Rev. Lett. **94**, 223602 (2005).

Chapitre 3

Boîtes Quantiques Semiconductrices

Sommaire

3.1	Physique des Semiconducteurs sur le Dos d'une Enveloppe .	56
3.1.1	Structure de Bandes-Masse Effective-Trous	56
3.1.2	Excitation Élémentaire : Exciton	59
3.1.3	Règles de Sélection Optique	60
3.2	Boîtes - Ilots - Points Quantiques	61
3.2.1	Croissance des Boîtes	61
3.2.2	Confinement des Porteurs	63
3.3	Entrons dans les Détails	68
3.3.1	Structure Fine - Dégénérescence de l'Exciton	68
3.3.2	Mélange de Bandes et Excitons Noirs	71
3.3.3	Biexciton et Enchevêtrement en Polarisation	72
3.3.4	Exciton Chargé sous Champ Magnétique	73
3.4	Différences de Matériaux : II-VI contre III-V	76
3.4.1	Différence de Confinement	76
3.4.2	Différence de Force d'Oscillateur	77
3.4.3	Différence de Longueurs d'Ondes d'Emission	79
3.4.4	Différence de Densités	80

Epitomé

Dans une première partie nous allons rappeler brièvement quelques indispensables de physique des semiconducteurs pour pouvoir rentrer dans le vif du sujet. Nous y développerons les fondamentaux de la physique des semiconducteurs massifs tels que l'existence de structure de bandes, les approximations faites, en particulier celle de la masse effective dans ce problème à N corps avec N très grand. Nous décrirons l'existence de l'excitation élémentaire d'un semiconducteur, l'exciton, qui est responsable de l'émission de photons dans de tels matériaux. Nous parlerons ensuite de la façon de fabriquer des boîtes quantiques (que nous noterons parfois BQs) par épitaxie par jets moléculaires. Toutes les propriétés élémentaires de tels systèmes et en particulier les propriétés optiques seront développées. Nous illustrerons ce chapitre par des mesures que nous avons effectuées nous-même sur le sujet. Pour finir nous ferons une comparaison des boîtes quantiques faites à base de matériaux II-VI que nous avons étudiées, avec les autres BQs de la littérature faites à base de matériaux III-V. Il est à noter qu'aucune expérience de transport ne sera décrite puisque nous n'avons essentiellement étudié que les caractéristiques purement optiques de boîtes quantiques semiconductrices.

3.1 Physique des Semiconducteurs sur le Dos d'une Enveloppe

3.1.1 Structure de Bandes-Masse Effective-Trous

Structure de Bandes d'Énergies

Il n'est pas question ici de redémontrer toute la théorie des semiconducteurs mais plutôt de jeter les bases de physique du solide et en particulier de physique des semiconducteurs nécessaires pour mieux comprendre les phénomènes mis en jeu dans nos expériences.

Considérons pour cela l'exemple de la figure 3.1-a) de la formation d'une molécule diatomique à l'aide de 2 atomes identiques. Si l'on considère 2 atomes identiques A chacun sur un niveau d'énergie s (nous nous limiterons à l'état s mais il faudrait en principe prendre en compte les états p aussi) alors la constitution de la molécule diatomique A_2 va donner lieu à la formation de deux autres niveaux d'énergies σ^b et σ^* d'énergies respectivement moins et plus grande que le niveau s . Il y a donc création d'une différence d'énergie entre ces deux niveaux, un "gap" de valeur E_g . Dès lors, on peut extrapoler et montrer que si l'on considère un cristal avec un très grand nombre d'atomes placés selon un réseau, on aura un très grand nombre de niveaux d'énergie atomique, associés à une orbitale atomique. On aura donc un très grand nombre de nouvelles orbitales créées par l'association de tous ces atomes comme dans le cas de la molécule. Ces orbitales ont tendance à s'agglutiner ensemble formant un continuum d'énergie, une bande d'énergie de largeur finie. Qualitativement, la structure en énergie résultante de toutes ces interactions atomiques reste similaire à celle de la molécule puisque l'on retrouve un gap d'énergie E_g entre les 2 bandes d'après Fig 3.1-a). Il suffit alors de remplir ces bandes d'énergies

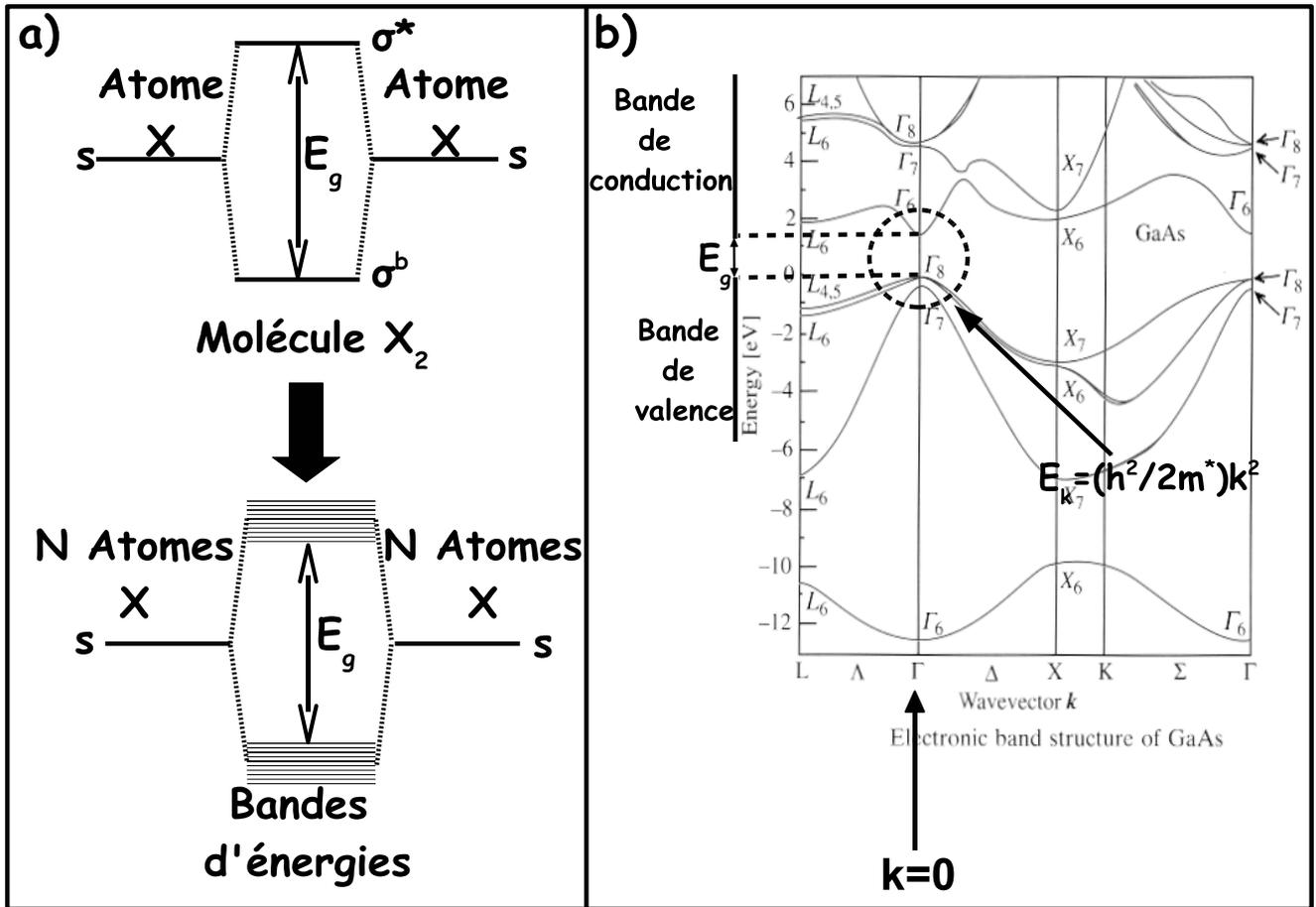


FIG. 3.1 – a) Représentation de l'existence de bandes d'énergies dans un solide. Schématisation du passage de l'interaction de 2 atomes, avec formation d'une molécule, à N atomes, avec formation d'un réseau. b) Diagramme complet de bandes d'énergies de GaAs.

par les électrons existant dans le réseau jusqu'à arriver aux derniers électrons à placer. Pour les semiconducteurs, la dernière bande d'énergie remplie est alors appelé bande de valence et la première bande non-remplie, bande de conduction. La figure 3.1-b) montre le diagramme de bandes d'énergie complet du semiconducteur GaAs. Ce matériau a des propriétés cristallines très similaires de celles des matériaux que nous avons étudiés comme CdSe et CdTe, en particulier la cristallisation se fait dans la structure zinc-blende. Cette structure est une structure cubique à faces centrées pour As (Te ou Se) dont les sites tétraédriques du réseau sont occupés par des atomes de Ga (Cd). Cela nous donne 8 atomes par maille conventionnelle.

Approximation de la Masse Effective

D'après la figure 3.1-b), au voisinage de la dispersion nulle du matériau, i.e. pour le vecteur d'onde $\vec{k} = \vec{0}$ (encore appelé point Γ), on peut remarquer que la forme de la bande de conduction et de la bande de valence est proche d'une parabole. On peut alors poser

pour l'évolution de l'énergie en fonction de \vec{k} que :

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 |\vec{k}|^2}{2m^*} \quad (3.1)$$

où m^* est appelé masse effective ; c'est elle qui va fixer la courbure de la bande d'énergie k qui nous intéresse. On notera que cette relation est valable pour les électrons, alors que pour les trous, la situation est plus compliquée car la masse effective n'est pas isotrope, mais nous y reviendrons par la suite. Cette approximation, appelée approximation de la masse effective, nous permet de simplifier grandement le problème notamment lorsque l'on va vouloir calculer théoriquement quelles sont les longueurs d'ondes d'émission dans des nanostructures comme les boîtes quantiques. Les hamiltoniens des électrons et des trous se simplifient alors grandement.

Notion de Trous

On peut montrer que pour un semiconducteur, à température nulle, tous les états de la bande de valence sont occupés. La bande de conduction est alors vide. A température non-nulle, quelques électrons vont venir occuper des états du bas de la bande de conduction vidant alors quelques niveaux de la bande de valence. De tels états excités sont également formés lorsque le solide absorbe un photon d'énergie plus grande que le gap entre la bande de valence et la bande de conduction comme vu précédemment. Un électron va donc passer de la bande de valence à la bande de conduction laissant derrière lui un non-électron, une absence d'électron, dans la bande de valence.

Cette absence d'électron est appelé trou dans la bande de valence. Par conservation de l'énergie et du moment, on peut alors définir une masse effective pour le trou qui est responsable de la courbure de la bande de valence, comme nous l'avons vu précédemment pour l'électron. De même qu'un électron possède un spin intrinsèque, on définira également le spin du trou. A présent, on peut montrer qu'il existe dans un solide un couplage dit spin-orbite entre le spin S de l'électron et le moment orbital L de l'atome. Cet effet engendre dans l'hamiltonien un terme supplémentaire de couplage $L.S$. L et S ne sont donc plus conservés séparément, uniquement le moment total $J = L + S$ est conservé. Les valeurs propres de J^2 étant $j(j + 1)$ avec $|l - s| \leq j \leq |l + s|$. La bande de conduction (notée Γ_6 en théorie des groupes, voir la Fig 3.1-b)), pour laquelle $l = 0$ n'est pas affecté par ce couplage, en revanche la bande de valence, pour laquelle on montre que $l = 1$, est affecté. Cette bande est donc séparée en 2 puisque $j = 3/2$ ou $j = 1/2$. Les 2 bandes sont séparées par le terme dit de **split-off**, une bande est donc dégénérée 4 fois pour $j = 3/2$, on a $j_z = 3/2, 1/2, -1/2, -3/2$ (notée Γ_8 , voir la Fig 3.1-b)) et une dégénérée 2 fois seulement pour $j = 1/2$ (notée Γ_7 , voir Fig 3.1-b)) séparées de l'énergie de couplage spin-orbite habituellement notée Δ_{so} . On a alors pour la bande Γ_7 , $j_z = 1/2, -1/2$. En $\vec{k} = 0$, la bande de valence est donc la bande Γ_8 qui est totalement dégénérée 4 fois.

La figure 3.1-b) représente le diagramme de bandes de GaAs dans le cas d'un matériau massif. Or sous l'effet des contraintes, dues à la compression lors de la formation des boîtes quantiques (voir 2.1.2 pour une explication de la formation des BQs par épitaxie),

la bande Γ_8 subit elle aussi une séparation en $\vec{k} = 0$ donnant lieu à une bande de valence de trous légers (de spin 1/2, notés *lh* pour **light holes**) et de trous lourds (de spin 3/2, notés *hh* pour **heavy holes**). Dans la bande de conduction, l'électron, ayant un spin $\pm 1/2$, ne va donc pas interagir de la même façon avec ces deux types de bandes. En effet, les bandes de conduction et de trous légers vont avoir tendance à se repousser puisque les particules ont le même spin alors que la bande de conduction n'interagira pas avec la bande des trous lourds d'où une courbure moins importante de cette bande par rapport à la bande de trous légers.

Pour cette raison, dans toute la suite, nous supposons que les bandes de trous lourds et de trous légers sont bien séparées en énergie même en $\vec{k} = \vec{0}$. Dès lors dans tous les processus physiques, notamment la formation d'exciton, nous supposons que seul le trou lourd de moment de spin $\pm 3/2$ selon l'axe de croissance est impliqué. On notera que cette approximation est très commune mais pas toujours valable. Il existe des conditions particulières où seul le mélange des bandes de valence trous lourds-trous légers peut expliquer certains phénomènes observés.

3.1.2 Excitation Élémentaire : Exciton

Nous avons déjà sous-entendu qu'une paire électron-trou représentait l'excitation élémentaire d'un semiconducteur parfait. Cette paire électron-trou peut être créée par l'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ plus grande que la bande interdite, donc d'énergie plus grande que E_g . A nouveau, il y a conservation de la quantité de mouvement du système. Autrement dit le vecteur d'onde de l'électron dans la bande de conduction est égal à la somme du vecteur d'onde du trou dans la bande de valence et du moment du photon. La longueur d'onde du photon étant bien plus grande que le paramètre du réseau, on néglige le vecteur d'onde du photon et l'on dit que la transition excitonique est verticale de bande à bande en Γ c'est à dire en $\vec{k} = 0$. On notera que dans tout ce qui suit, *e* signifie l'électron et *h* le trou.

Toutefois, dans cette description, on ne fait pas état du fait qu'il y ait une interaction coulombienne entre l'électron et le trou. Dès lors le complexe formé est appelé un exciton dont l'énergie fondamentale est plus basse que la largeur de la bande interdite. La différence d'énergie étant l'énergie de liaison de l'exciton. On peut montrer que dans le formalisme de la fonction enveloppe, très utile en physique du solide, la fonction enveloppe à deux particules est une fonction $F(\vec{r}_e, \vec{r}_h)$ qui vérifie l'équation :

$$\left[\frac{p_e^2}{2m_e^*} + \frac{p_h^2}{2m_h^*} - \frac{q^2}{4\pi\epsilon\epsilon_0|\vec{r}_e - \vec{r}_h|} \right] F(\vec{r}_e, \vec{r}_h) = E.F(\vec{r}_e, \vec{r}_h) \quad (3.2)$$

Cette équation traduit le mouvement d'une paire électron-trou soumise à l'interaction de Coulomb.

Pour comprendre un peu mieux l'introduction de la fonction enveloppe, rappelons que pour un solide cristallin parfait et infini, dans l'approximation à un électron, on recherche les solutions de l'Hamiltonien donné par :

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_e}\Delta + V_{crist} \quad (3.3)$$

où m_e est la masse de l'électron et V_{crist} est le potentiel cristallin périodique dû aux ions du réseau et à tous les autres électrons. Les solutions habituelles sont celles des fonctions de Bloch données par :

$$\Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_{\vec{k}}(\vec{r}).e^{i\vec{k}.\vec{r}} \quad (3.4)$$

avec $u_{\vec{k}}(\vec{r})$ une fonction périodique. A présent, lorsque le matériau connaît un défaut ponctuel, par exemple comme la formation d'un boîte quantique, on s'écarte de la situation idéale et l'Hamiltonien donné par (3.3) sera le même à la contribution d'un terme de potentiel près en plus, $V(\vec{r})$, qui va traduire la présence de ce défaut et donc rendre son caractère fini au matériau. Les nouvelles fonctions propres seront alors données par :

$$\Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = u_0(\vec{r}).F(\vec{r}) \quad (3.5)$$

où $F(\vec{r})$ est la fonction enveloppe solution de l'équation (3.2) plus haut.

En reprenant l'équation (3.2), on voit que les 2 premiers termes traduisent les quantités de mouvement de l'électron et du trou alors que le troisième terme est l'interaction coulombienne classique entre 2 charges, en $1/r$. Dans le formalisme à 2 corps du centre de masse et de la masse réduite, on peut se ramener à l'étude de l'atome d'hydrogène dont les solutions sont bien connues. On peut alors en déduire l'énergie de liaison et surtout le rayon de Bohr effectif de l'exciton qui est donné par :

$$a^* = \frac{a_0.\epsilon.m_0}{\mu} \quad (3.6)$$

avec μ la masse réduite donnée par $1/\mu = 1/m_e^* + 1/m_h^*$, $a_0 = 0.0529 \text{ nm}$ le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène, m_0 la masse de l'électron dans le vide et ϵ le coefficient diélectrique du matériau.

Pour les matériaux II-VI type CdTe et CdSe, les valeurs typiques du rayon de Bohr de l'exciton sont de 5 à 10 nm. Cette valeur est importante pour comprendre le caractère discret des raies d'émission de boîtes quantiques et devra être comparée aux valeurs des tailles des boîtes. Le confinement spatial latéral est aussi à prendre en compte puisque c'est lui qui va intervenir pour la quantification des niveaux. Enfin l'énergie de liaison de l'exciton, étant abaissée par l'interaction de Coulomb, est légèrement inférieure à l'énergie de gap E_g du matériau. Autrement dit, l'exciton a des niveaux d'énergies dans la bande interdite du semiconducteur.

3.1.3 Règles de Sélection Optique

Les techniques optiques sont un des grands moyens d'étude des semiconducteurs et en particulier l'absorption est sans doute le plus simple, du moins pour les matériaux massifs.

On parle d'absorption lorsqu'un photon incident disparaît et sert à faire passer un électron d'un état initial à un état final d'énergie plus élevée. On peut alors mesurer le

coefficient d'absorption α en fonction de l'énergie $\hbar\omega$ du photon incident. Cette mesure renseigne sur le processus microscopique c'est à dire sur la probabilité d'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega$, accompagnée d'un passage d'un électron d'un état initial $|i\rangle$ vers un état final $|f\rangle$. Comme nous l'avons vu dans la partie 2.1.1, pour un semiconducteur, l'état initial est un état de la bande de valence et l'état final un état de la bande de conduction. Il est bien connu en mécanique quantique qu'une transition optique est décrite par la règle d'or de Fermi et dépend de la symétrie du système. Cette règle nous donne la probabilité par unité de temps W_{if} que le système passe d'un état $|i\rangle$ vers un état $|f\rangle$ sous l'action d'un opérateur dépendant du temps H_ω :

$$W_{if} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle i|H_\omega|f\rangle|^2 \cdot \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (3.7)$$

où δ est la fonction de Dirac. L'opérateur responsable de la transition est le couplage entre le système électronique et le champ électromagnétique. Au premier ordre, cet opérateur de couplage est une transition dipolaire électrique qui s'écrit :

$$H_\omega = q \frac{\vec{A} \cdot \vec{p}}{m_0} \quad (3.8)$$

Grâce à des mesures d'absorption optique, on peut par exemple retracer le diagramme de bande de GaAs de la figure 3.1-b) au voisinage du gap.

Pour conclure cette partie, rappelons deux points importants, le premier étant que comme il a été dit précédemment, la transition est souvent supposée être verticale (i.e. $\Delta\vec{k} = \vec{0}$) et le deuxième que le photon possède un spin équivalent de 1. Par conséquent, la conservation du spin doit aussi être prise en compte lorsque l'on effectue des mesures optiques d'absorption où de photoluminescence.

3.2 Boîtes - Ilots - Points Quantiques

3.2.1 Croissance des Boîtes

Historiquement, la première observation de boîtes quantiques a été faite par Goldstein et collaborateurs en 1985 du Centre National d'Etudes en Télécommunications de Bagnex [1]. A cette époque beaucoup d'équipes dans le monde étudiaient la formation et les propriétés des superréseaux. Ces superréseaux sont une succession de puits quantiques très fins faits de matériaux différents, donc d'indices différents, avec des confinements différents pour l'électron et le trou. Ceci dans l'espoir de réaliser un laser par exemple, ou des photodétecteurs permettant de détecter des longueurs d'ondes inhabituelles ou encore de détecter la lumière plus efficacement. La technique la plus adaptée, et toujours utilisée de nos jours pour réaliser de telles structures est la méthode d'épitaxie par jet moléculaire ou encore *Molecular Beam Epitaxy* (MBE). Elle consiste à déposer des couches monoatomiques d'un matériau sur un autre en contrôlant parfaitement l'épaisseur de la monocouche déposée en surface et en imposant le paramètre de maille de la couche, en accord avec celui du substrat. En fait, avec une densité de jet inférieure à 10^{14} *at/cm*²

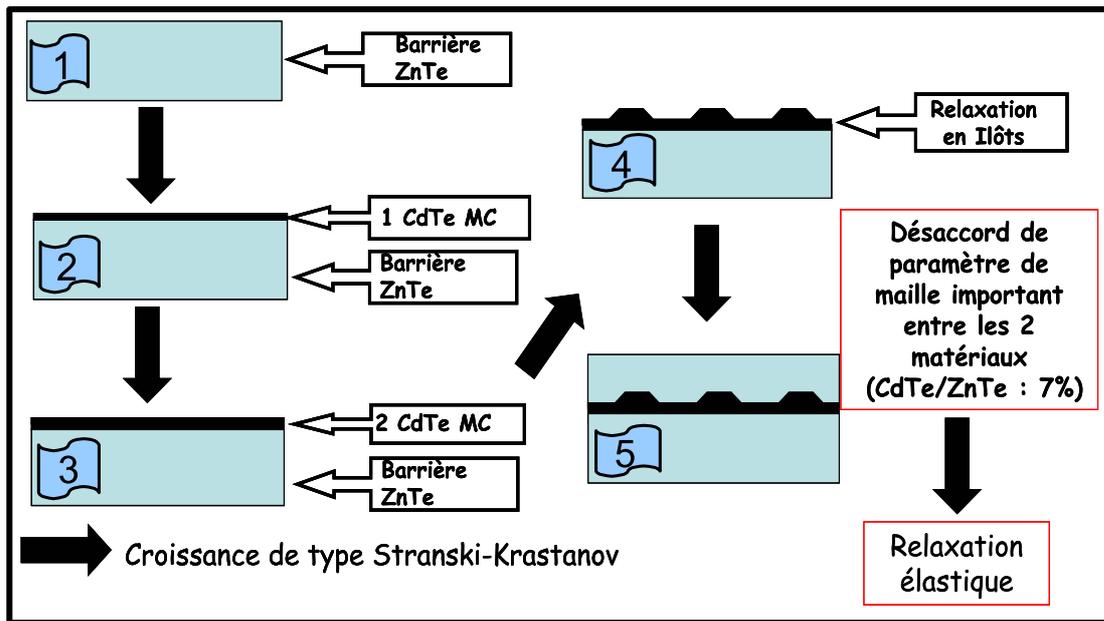


FIG. 3.2 – Déroulement d’une croissance par épitaxie par jet moléculaire de boîtes de CdTe sur substrat de ZnTe, puis encapsulées par ZnTe à nouveau.

(une monocouche étant de l’ordre de 10^{14} at/cm^2), on obtient ce que l’on appelle des adatoms i.e., des atomes dispersés sur une surface 2D.

Utilisant cette technique, cette équipe a cependant observé que si deux matériaux avaient des paramètres de maille sensiblement différents (de l’ordre de 6%) alors la couche du deuxième matériau déposée sur la surface va connaître des contraintes mécaniques dues au fait que son réseau ne peut pas complètement s’accorder avec celui du premier matériau. Dès lors, la croissance bidimensionnelle 2D devient tridimensionnelle 3D. Cela se traduit par le fait que l’énergie élastique emmagasinée est artificiellement relâchée en formant des îlots 3D du second composant, avec cependant une fine couche déposée restante 2D, appelé couche de mouillage. La surface devient donc boutonneuse, remplie de ces excroissances un peu partout. Les auteurs ont démontré que ce passage 2D vers 3D ne se faisait pas aléatoirement mais uniquement pour une certaine épaisseur du second composant, de l’ordre de 2.5 monocouches. Ces îlots se forment de façon spontanée, on dit qu’ils sont auto-assemblés (Self-Assembled Quantum Dots). En conclusion, les auteurs ont également démontré que les propriétés optiques de ces îlots étaient complètement différentes de celles obtenues lorsque la croissance restait 2D.

Tous les résultats présentés dans cette thèse ont été effectués sur des échantillons de CdTe dans ZnTe épitaxiés par Frank Tinjod et Henri Mariette, et sur des échantillons de CdSe dans ZnSe épitaxiés par Ivan-Christophe Robin et Régis André. La Fig 3.2 montre typiquement le développement d’une croissance de boîtes quantiques (puisque c’est le nom aujourd’hui adoptée pour de telles structures) de CdTe sur ZnTe dans ce cas, donc des matériaux de la famille des II-VI. Goldstein et al. ont effectué leur observation sur des boîtes de InAs sur GaAs qui étaient des matériaux dont la croissance était la mieux

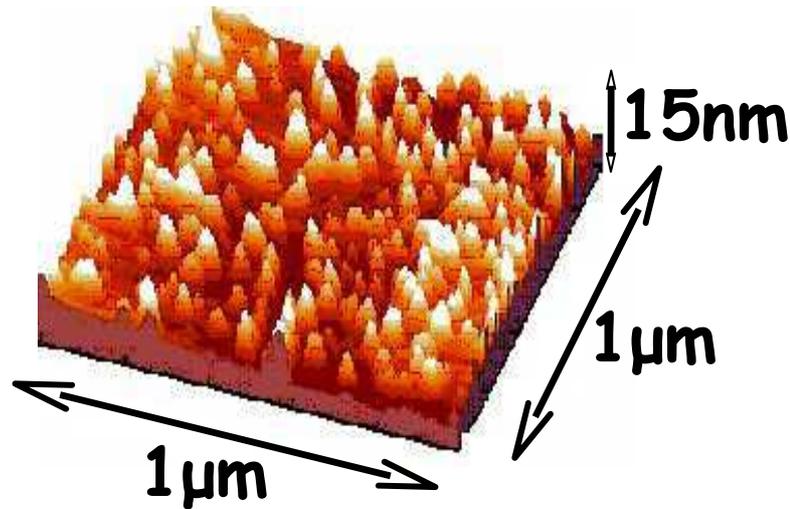


FIG. 3.3 – Image de microscopie à force atomique (AFM) d'un plan de boîtes quantiques auto-assemblées CdTe sur substrat ZnTe. D'après [2]

maîtrisée à l'époque. La croissance consiste donc à déposer des monocouches de CdTe (ou de CdSe) sur un substrat de ZnTe (ou de ZnSe) jusqu'à ce que l'épaisseur critique soit atteinte. A cette épaisseur, les BQs vont commencer à nucléer et donc à se former en îlots. Une fois les boîtes formées, on les encapsule à l'aide du premier matériau pour pouvoir avoir un indice homogène autour de la boîte et pour le confinement 0D.

La figure 3.3 montre une image prise par microscopie à force atomique (**A**tom**i**c **F**orce **M**icro**s**copy ou AFM en anglais) d'après [2]. Cette image représente des boîtes quantiques de CdTe sur ZnTe prise avant l'encapsulation par du ZnTe. On peut voir que la densité d'îlots est de l'ordre de quelques $10^{10} / \text{cm}^2$, cette image étant prise sur $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ de côté et pour 15 nm de hauteur. Typiquement, ces points quantiques (qui est la traduction directe de la terminologie anglaise actuelle : **q**uantum **d**ots) sont comme des lentilles hémisphériques déposées sur une surface. Les dimensions sont de l'ordre de quelques nm d'épaisseur et de 10 à 20 nm de rayon.

3.2.2 Confinement des Porteurs

Puits Quantiques Tridimensionnels

A présent que nous savons comment former des boîtes quantiques, il est intéressant de voir si on peut modéliser les niveaux des porteurs piégés dans ces boîtes.

Nous avons vu dans la partie 2.1.2 que l'interaction coulombienne abaisse l'énergie de l'exciton par rapport à une paire électron-trou sans interaction et possède donc des niveaux d'énergies qui se trouvent au bord du gap (i.e. de la bande interdite) du semiconducteur, légèrement en-dessous. Dès lors, lorsque l'on va créer une paire électron-trou, par le moyen d'une excitation laser par exemple, la paire créée, d'énergie plus grande que E_g au départ, va venir se piéger dans ces pièges de potentiels tridimensionnels que forment les boîtes

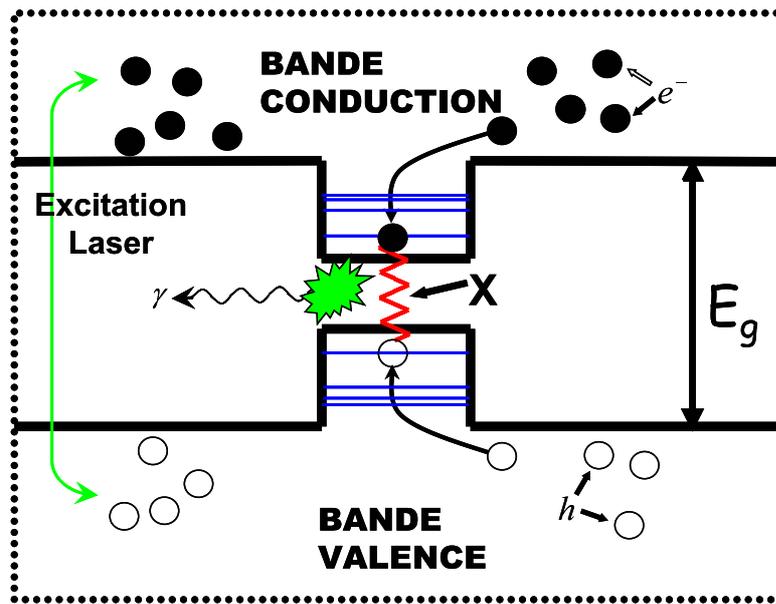


FIG. 3.4 – Représentation du confinement de l'électron et du trou dans une boîte quantique, avec formation d'un exciton par excitation laser.

quantiques et former les excitons. La relaxation se fera grâce à la création de phonons, optiques ou acoustiques, qui viendront "débarrasser" la paire électron-trou de son énergie excédentaire avant de devenir un exciton. Toutefois, arrivé au bord du gap, E_g étant trop grand pour qu'un phonon puisse absorber l'énergie nécessaire, la seule solution pour l'exciton est de se recombiner radiativement pour former un photon. La Fig 3.4 illustre ce phénomène où l'on a un piège localisé réalisé par une boîte qui va confiner l'électron et le trou de l'exciton (appelé X ici). Celui-ci, une fois arrivé au "bord" du gap n'aura d'autre choix que de s'annihiler pour donner un photon.

On peut alors s'interroger sur l'effet du confinement sur l'exciton dans cette boîte. D'après la mécanique quantique, vu que le rayon de Bohr est de l'ordre de la taille du piège de l'ordre de 20 nm (voir la Fig 3.3 de l'image AFM d'îlots de CdTe), comme pour l'atome d'hydrogène, on va avoir une discrétisation des niveaux d'énergies accessibles par l'exciton. Cette quantification des niveaux énergétiques de l'exciton va avoir pour conséquence d'affiner la longueur d'onde d'émission du photon émis par la boîte. la raie d'émission spectrale sera alors plus étroite. Cela est dû au fait que l'on réduit le continuum d'états finaux énergétiquement accessibles pour la recombinaison radiative.

Essayons à présent de modéliser ce confinement 3D par un puits quantique tridimensionnel de barrières infiniment hautes. On peut facilement montrer qu'il y a aura en effet une quantification de l'énergie qui sera donnée par :

$$E(n, m, l) = E_0 + \frac{\hbar^2}{2m^*} \left[\left(\frac{\pi}{L_x} n \right)^2 + \left(\frac{\pi}{L_y} m \right)^2 + \left(\frac{\pi}{L_z} l \right)^2 \right] \quad (3.9)$$

Ce modèle peut donner de bons résultats selon les effets physiques étudiés, toutefois il

ne rend pas toujours bien compte des données observées. Le fait qu'une boîte est un axe privilégié (l'axe de croissance) n'est pas pris en compte dans ce cas. De plus, au vu des images AFM, il apparaît qu'une boîte quantique se présente plutôt comme un disque épais sur une surface qu'un cube à côtés abrupts et saillants. Nous allons voir qu'un potentiel parabolique bidimensionnel est mieux adapté dans ce cas.

Potentiel Parabolique Bidimensionnel

Les boîtes quantiques étant en forme de lentille plan-convexe, on prendra le cas d'un potentiel parabolique bidimensionnel. On supposera donc le potentiel créé par les BQs est bien décrit par un confinement de type puits quantique dans la direction de croissance, que l'on appellera z , et par un potentiel harmonique 2D dans le plan xy . L'hamiltonien de l'électron est alors donné par :

$$H_e = \frac{p^2}{2m_e} + \frac{1}{2}m_e(\omega_x^2 x^2 + \omega_y^2 y^2) + V_e(z) \quad (3.10)$$

le trou ayant un hamiltonien similaire si l'on suppose que le confinement est identique pour le trou.

On retrouve ainsi le terme V_e dû au puits selon z , et les termes harmoniques dans le plan xy . En l'absence de champ magnétique, les états confinés présentent alors une structure en couches que nous noterons s, p, d, \dots par analogie à la physique atomique et aux niveaux atomiques de l'atome d'hydrogène. Ces niveaux seront séparés d'une certaine énergie constante et la dégénérescence respective sera 2, 4, 6... en prenant en compte la dégénérescence de spin i.e. un facteur 2 pour chaque niveau.

On comprend mieux à la vue de ce formalisme pourquoi les boîtes quantiques sont parfois appelées "atomes artificiels" ou "superatomes". Ces niveaux discrets d'énergies rappellent en effet fortement les niveaux de l'atome d'hydrogène. Toutefois, il faut bien avoir en tête que la comparaison ne doit pas être faite sans mégarde. Dans un atome, les électrons changent de niveaux mais sont toujours présents alors qu'une boîte quantique "perd" ses électrons au fur et à mesure que les excitons se recombinent. Nous verrons plus en détails par la suite que l'état s d'une boîte quantique peut contenir 2 paires électron-trou i.e. 2 excitons. Le deuxième exciton étant différent du premier exciton (voir suite) on le nomme communément biexciton (X_2). Dans ce cas, la recombinaison de ces excitons se fait en cascade, 2 puis 1 puis 0 exciton dans la BQ. Si l'on veut faire une véritable analogie avec la physique atomique alors cela veut dire que l'on passe de l'atome d'hélium à l'atome d'hydrogène puis finalement au vide. Il apparaît donc clairement que l'on ne peut pas passer directement au niveau biexcitonique sans passer par le niveau excitonique. Chose qui est tout à fait possible en physique atomique si l'énergie fournie est suffisante. Nous verrons cependant que l'on peut simultanément créer l'exciton et le biexciton.

Transitions Multiexcitoniques

Comme il a déjà été mentionné dans la partie précédente, une boîte quantique peut contenir, 1 exciton mais aussi 2, 3, etc... Pour cela, deux paramètres sont pertinents, le confinement plus ou moins important mais aussi la taille de la boîte qui ne peut contenir qu'un certain nombre d'excitons.

Pour passer de 1 à plusieurs excitons, il suffit d'augmenter l'intensité du laser d'excitation (appelé laser de pompe) pour augmenter la probabilité de présence de plusieurs paires électron-trou. Progressivement, on remplit les états s à 2 électrons (l'exciton et le biexciton) puis les états p (le triexciton et plus) et ainsi de suite. Une première preuve flagrante de ce remplissage a été démontré par Bayer et al. en 2000 dans un article paru dans Nature [3]. La Figure 3.5 montre comment par lithographie électronique ils ont réussi à isoler une seule boîte sous leur microscope (Fig 3.5-a)) et les résultats qu'ils ont obtenus en observant son spectre. Fig 3.5-b) montre le spectre obtenu sur un ensemble de boîtes, où distinctement apparaissent 2 familles de raies d'émissions représentant les états s et p en fonction de la puissance du laser de pompe. Ils illustrent ces caractéristiques par un petit schéma dans l'encart montrant les différentes transitions excitoniques impliquées. La Fig 3.5-c) présente à nouveau le spectre d'émission mais réalisé sur une seule boîte quantique, celle isolée en a). On voit précisément que lorsque l'intensité du laser d'excitation augmente, il y a apparition de l'exciton X puis du biexciton X_2 puis du triexciton X_3 et ainsi de suite avec un spectre qui se complique de plus en plus au fur et à mesure que la puissance du laser de pompe augmente. Enfin la figure 3.5-d) montre les prédictions théoriques du spectre d'émission d'une telle boîte utilisant un modèle comme celui décrit précédemment par un potentiel harmonique bidimensionnel tenant compte aussi des interactions coulombiennes entre porteurs. Il apparaît que les prédictions sont en relativement bon accord avec le spectre expérimental.

Exciton Chargé

Pour finir cette partie, et avant de rentrer dans les détails sur la structure de l'exciton et de ces dérivés complexes, nous devons introduire la notion d'exciton chargé qui s'avérera être très importante dans certaines de nos expériences. Un exciton chargé (appelé trion) est un exciton neutre (une paire électron-trou liée par l'interaction coulombienne) avec un porteur en plus, soit un électron soit un trou.

On sait depuis longtemps que l'on peut doper la plupart des matériaux semiconducteurs. Doper voulant dire que dans le cristal de départ, certains atomes ont été remplacé par d'autres n'ayant pas le même nombre d'électrons de valence. Si les électrons sont en défaut on dit que le matériau est dopé p , et il y a donc un déficit d'électron dans le réseau cristallin, et si les électrons sont en excès alors le matériau est dopé n et il y a cette fois-ci un excédent. Dans le cas qui nous intéresse, i.e. dans des structures II-VI, le dopage n résiduel est plus ou moins important. Il est donc intentionnel ou non-intentionnel selon les matériaux utilisés. En effet, CdTe doit être dopé volontairement par l'introduction d'impuretés au moment de la croissance, mais CdSe à l'inverse est naturellement dopé n . Il n'y a donc pas besoin d'impuretés supplémentaires. En fait, le problème serait plutôt de ne pas avoir de dopage dans de telles BQs. La Fig 3.6 représente les niveaux d'énergie

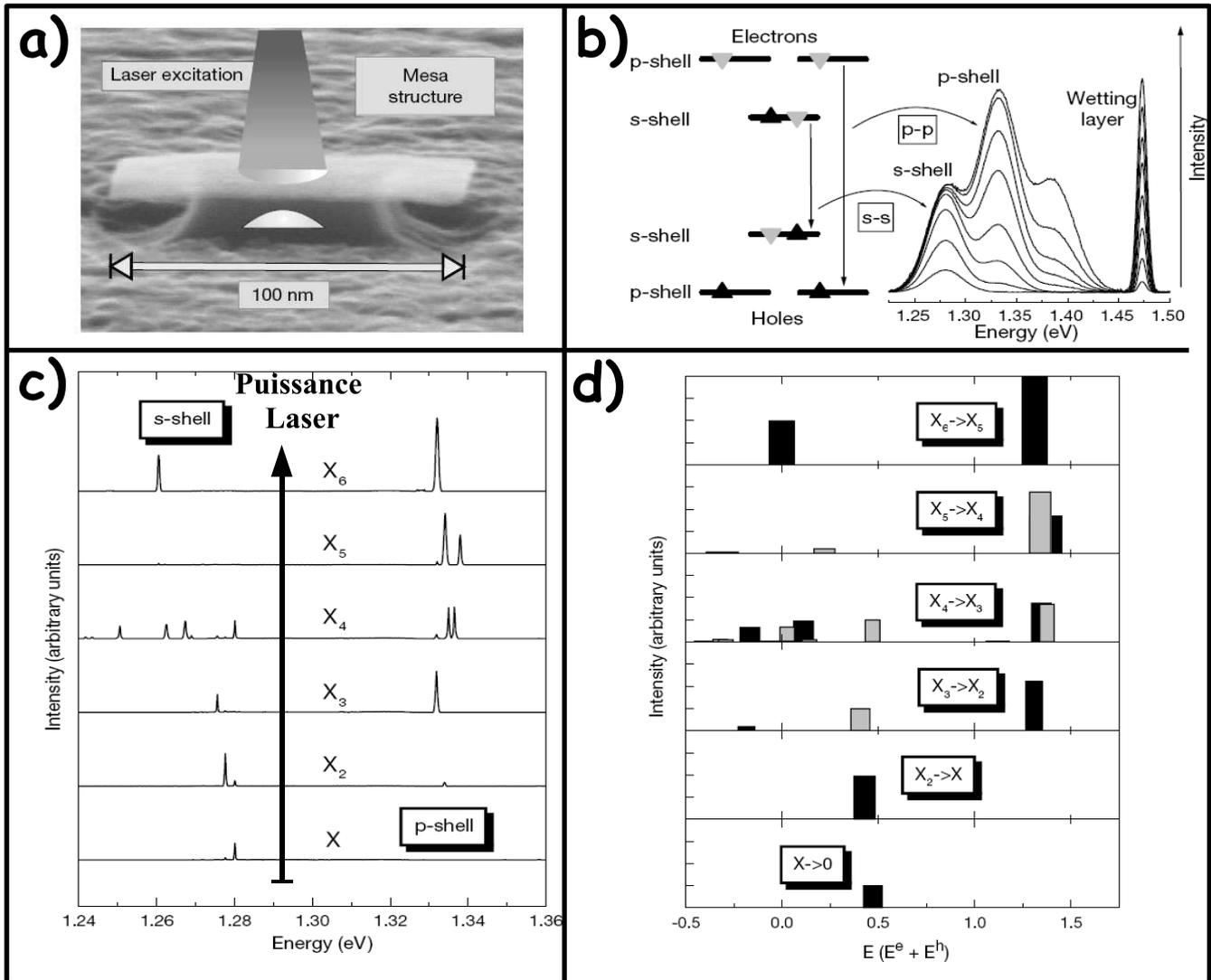


FIG. 3.5 – a) Image STM d'un méso de 100 nm de côté contenant une seule boîte quantique InAs dans GaAs. b) Schéma de niveaux d'une BQ et photoluminescence d'un ensemble de boîtes. c) Spectre d'une boîte unique en fonction de la puissance d'excitation. d) Schéma de niveaux théoriques d'une boîte quantique selon un modèle de potentiel parabolique 2D avec prise en compte des interactions coulombiennes (d'après [3]).

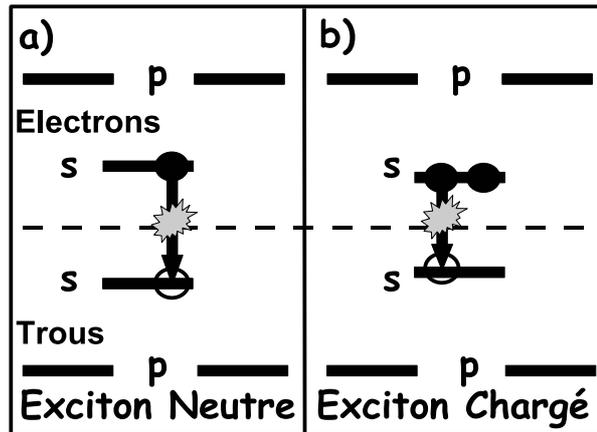


FIG. 3.6 – Représentation énergétique de l'exciton (neutre) en a) et du trion (exciton chargé) en b).

de l'exciton neutre en a) et de l'exciton chargé en b). L'exciton chargé est communément noté X^- dans le cas d'un dopage n , i.e. pour un électron excédentaire. La différence entre les 2 types d'excitons est que lorsqu'un exciton chargé se recombine, il laisse derrière lui un électron dans la boîte (ou un trou pour un matériau dopé p) contrairement à l'exciton neutre qui laisse la boîte vide. On notera aussi que l'énergie de liaison du trion dans une boîte quantique peut être positive ou négative, contrairement aux puits quantiques où l'énergie est toujours positive. Beaucoup d'études actuelles se penchent sur la façon d'imprimer une mémoire sur le spin de cet électron, contrôlable par l'état de polarisation du photon absorbé ou émis. Nous allons également voir dans la suite qu'il y a d'autres différences fondamentales entre X et X^- sur la polarisation des photons émis.

3.3 Entrons dans les Détails

3.3.1 Structure Fine - Dégénérescence de l'Exciton

A présent, nous allons un peu plus entrer dans les détails de l'étude des boîtes quantiques CdTe et CdSe. L'une des premières choses à laquelle on peut s'intéresser sur les photons émis par un exciton est leur polarisation. En effet, nous avons vu précédemment qu'un exciton devait satisfaire certaines conditions pour pouvoir se recombinaison radiativement et donc émettre un photon. Outre l'accord en énergie, il faut bien entendu qu'il y ait conservation du moment cinétique. Un photon ayant un moment cinétique équivalent de 1, il faut que le moment cinétique total du système électron+trou est aussi un moment cinétique de 1 pour pouvoir se recombinaison en émettant un photon.

La Fig 3.8-a) représente les 4 niveaux existants de l'exciton en jouant sur les diverses combinaisons de spin de l'électron ($\pm 1/2$) et du trou ($\pm 3/2$). Le moment total de l'exciton peut donc prendre 4 valeurs, 2 radiatives ($+1$ et -1) et 2 non-radiatives ($+2$ et -2). De plus, pour des raisons de symétrie, on peut montrer que les polarisations des photons doivent être circulaire droite ou gauche (σ^+ ou σ^-) par rapport à la perpendiculaire au plan de croissance, choisie comme étant z . Aux 2 excitons de moment $+1$ ou -1 corres-

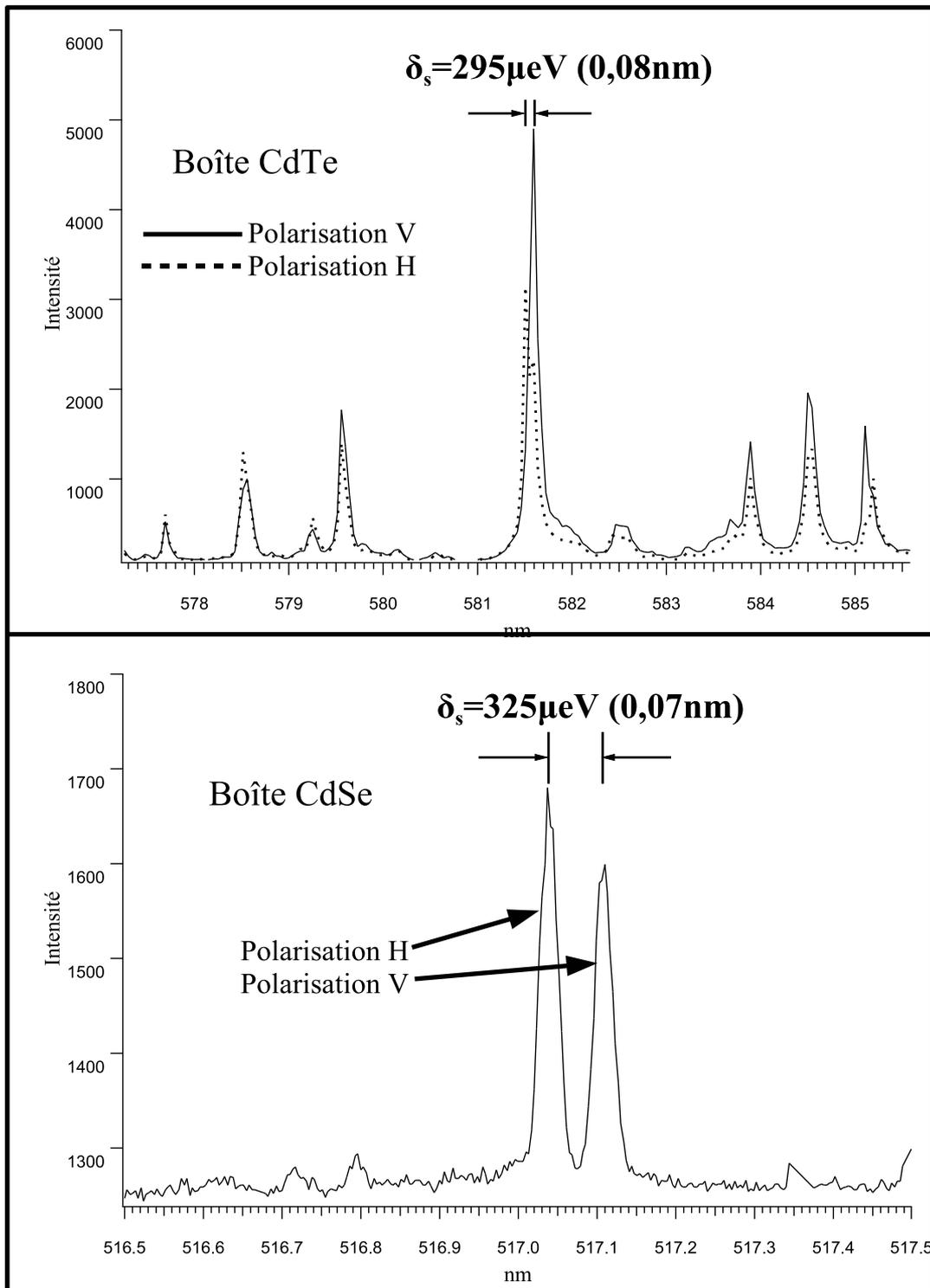


FIG. 3.7 – a) Valeur δ_s du doublet de l'exciton d'une boîte CdTe trouvée sur notre montage. b) Idem que a) sur un montage plus résolvant et sur une boîte de CdSe. Montage emprunté à L. Besombes et D. Ferrand.

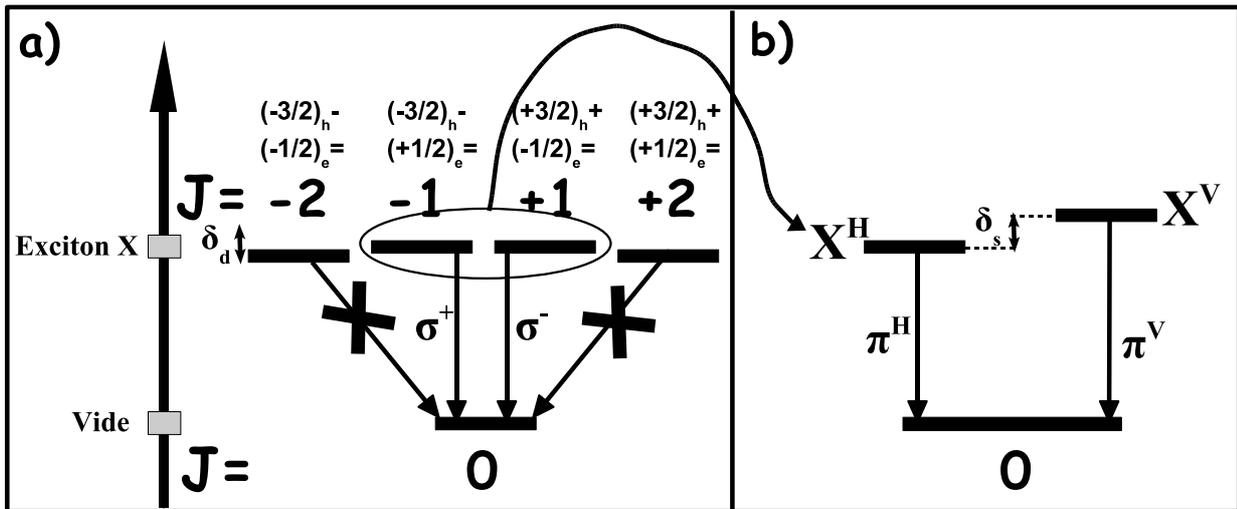


FIG. 3.8 – a) 4 Recombinaisons possibles de l'exciton vers le vide, composées de 2 radiatives et de 2 non-radiatives. b) Structure fine de l'exciton radiatif - Dégénérescence du niveau excitonique.

pondent donc 2 photons de polarisation circulaire.

Toutefois, les 2 niveaux dits brillants (i.e. radiatifs) subissent en fait une levée de dégénérescence due à l'anisotropie spatiale des BQs. En effet, de par leur mode de croissance, les boîtes quantiques ne sont pas homogènes en taille mais aussi en forme. Elles ne constituent donc pas un disque mais plutôt un ellipsoïde. Il y a alors un écart en énergie δ_s entre les 2 niveaux brillants qui peut varier entre 50 et 500 μeV dans les îlots quantiques II-VI (voir [8] pour la première évidence de cet effet sur des boîtes quantiques). La figure 3.8-a) présente aussi l'écart énergétique δ_d entre les états radiatifs et les états non-radiatifs. La figure 3.8-b) présente un grossissement de l'écart énergétique entre les 2 niveaux excitoniques radiatifs de moment $+1$ et -1 .

La figure 3.7-a) présente un écart typique de 295 μeV sur une boîte de CdTe obtenu sur notre montage. La Fig 3.7-b) montre un doublet excitonique d'une boîte de CdSe cette fois-ci mais à l'aide du montage plus résolvant de L. Besombes et D. Ferrand. Le spectromètre utilisé dans ce cas avait une focale de 100 *cm* donc 2 fois plus que le spectromètre que nous utilisons habituellement (voir chapitre 4 partie 4.4 pour les détails). On peut voir distinctement la séparation énergétique sur ce cas précis. Toutefois, notre montage était suffisant pour résoudre des doublets qui sont habituellement assez important sur les boîtes étudiées. Pour des boîtes de InAs par exemple, δ_s peut être si petit que même un spectromètre de focale de 1 *m* ne peut le résoudre [5]. La seule solution est de regarder les taux de polarisation linéaire. Toutes ces considérations de résolution spectrale de notre montage seront repris dans le prochain chapitre dédié à la description du montage expérimental lui-même.

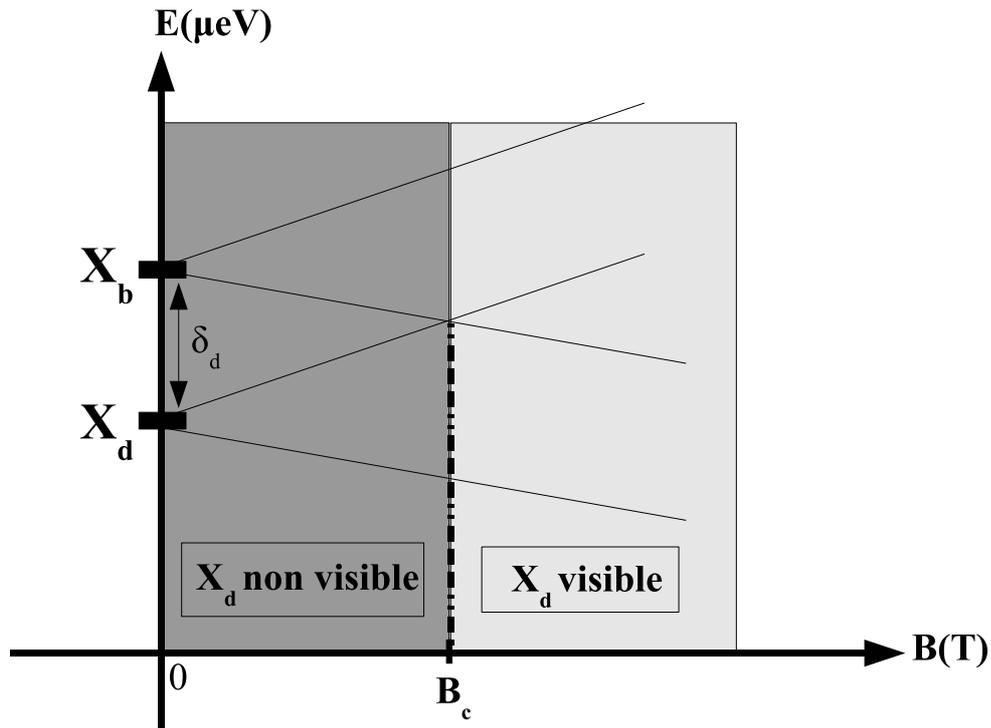


FIG. 3.9 – Evolution des niveaux d'énergies de l'exciton noir X_d et de l'exciton brillant X_b en fonction du champ magnétique B en configuration Faraday.

3.3.2 Mélange de Bandes et Excitons Noirs

Précédemment, nous avons vu qu'il y avait 2 types d'excitons, des radiatifs (que l'on appellera excitons brillants X_b) et des non-radiatifs (que l'on appellera excitons noirs X_d , d pour **dark** en anglais). On rappelle que la Fig 3.8 illustre l'existence de ces excitons non-radiatifs de moment cinétique ± 2 . A présent, on peut toutefois s'interroger de savoir si l'exciton noir est vraiment noir, c'est à dire si il n'y a aucun moyen de l'observer optiquement. Besombes et al. [20] ont pu observé ces excitons lorsqu'un champ magnétique est appliqué le long de l'axe de croissance (configuration Faraday). Sous champ magnétique, grâce au terme de couplage Zeeman, chaque niveau excitonique (noir et brillant) va être dédoublé et l'écart de chaque doublet va augmenter lorsque le champ B augmente. Dès lors, cet écart va apparaître au fur et à mesure que le champ augmente et au bout d'une certaine valeur lorsque les niveaux vont se rencontrer, les excitons noirs vont commencer à apparaître sur le spectre côté basse énergie. La figure 3.9 montre le diagramme d'énergie des excitons noirs et brillants avec sous champ nul l'écart énergétique déjà mentionné δ_d . B augmente et lorsque $B = B_c$ il y a croisement des niveaux et apparition des excitons noirs qui deviennent brillants. En fait, les auteurs ont même observé l'exciton noir sous champ magnétique nul. Clairement, cela ne peut être expliqué que par le mélange de bande trous lourds/trous légers auquel il a été fait allusion au début de ce chapitre.

Dans nos expériences, nous n'avons pas utilisé de champ magnétique ou du moins

que dans de très rares cas. Essentiellement, le champ magnétique nous a servi à identifier les excitons chargés (voir 2.3.4) et nous n'avons jamais vraiment observé de présence d'excitons noirs sans champ. Notre résolution spectrale moyenne est probablement une des raisons de cette non-observation du phénomène. D'après [20], l'écart énergétique n'est que de $\delta_d = 250 \mu eV$, ce qui est proche de notre résolution spectrale (voir chapitre 4, section 4.4). De plus, cet effet sous champ nul est très marginal et n'a été observé que sur un petit nombre de BQs, typiquement de l'ordre de 1% [5]. Il est à noter que ces effets ont été observés dans des boîtes II-VI et qu'ils sont difficilement observables dans des BQs III-V. En effet la séparation énergétique exciton noir-exciton brillant est presque 10 fois plus faible dans ce cas.

3.3.3 Biexciton et Enchevêtrement en Polarisation

Il est toujours possible de remplir une boîte quantique avec 1 mais aussi avec 2 excitons pour obtenir un biexciton X_2 . Nous avons vu précédemment que Bayer et al. ont démontré la possibilité de remplir une BQ avec plus que 2 excitons et de voir apparaître de la luminescence provenant de la couche **p**. Toutefois, il ressort que le remplissage se fait séquentiellement, un exciton puis un deuxième et ainsi de suite. De même, la désexcitation se fera en cascade, le biexciton se recombine tout d'abord puis l'exciton.

Comme suggéré dans la partie 2.2.2, une deuxième paire électron-trou dans la boîte n'est pas équivalente à 2 paires électron-trou. Si l'on suppose que E_X représente l'énergie d'un exciton et E_{X_2} l'énergie du biexciton alors nous avons $2E_X \neq E_X + E_{X_2}$. Cela est dû à l'interaction coulombienne entre les 2 paires électrons-trous qui va venir abaisser (ou augmenter dans certains cas) l'écart en énergie. Cet écart sera noté $\Delta_{X-X_2} = E_X - E_{X_2}$ dans la suite. La longueur d'onde de X_2 sera alors différente de celle de X et l'écart peut être observé sur un spectromètre. Cet écart en énergie Δ_{X-X_2} dépend des matériaux ; nous y reviendrons plus en détails dans la partie 2.3.1. Rappelons que lorsque l'on a 2 excitons dans une boîte, de par le principe d'exclusion de Pauli, les 2 électrons et les 2 trous ont forcément des spins opposés. Ceci veut dire que chaque électron (resp. trou) trouvera son trou (resp. électron) associé pour émettre radiativement un photon. Il n'existe donc pas de biexciton noir X_{2d} , ou du moins la probabilité de présence d'un tel complexe est très faible. Nous verrons dans le chapitre 5 que la présence d'une recombinaison biexcitonique non-radiative est cependant nécessaire pour comprendre certains résultats expérimentaux de corrélations de photons.

Ce moyen de produire des paires de photons a suscité beaucoup d'intérêt sur la potentialité de créer une source de photons enchevêtrés en polarisation. La figure 3.10-a) présente le diagramme de niveaux du complexe biexcitonique similaire à celui de la Fig 3.8. En l'absence de dégénérescence δ_s du niveau excitonique dans la boîte, un photon issu du biexciton et de polarisation donnée σ_+ , aura son exciton correspondant émettant un photon complémentaire de polarisation σ_- . De même, un photon issu du biexciton et de polarisation donnée σ_- , aura son exciton correspondant émettant un photon complémentaire de polarisation σ_+ . Dans de telles conditions, il est impossible, avant d'effectuer une mesure de polarisation, de prédire qu'elle sera la polarisation de X ou X_2 puisque

chaque voie est équiprobable. En revanche, lorsque l'on mesure une polarisation donnée pour X_2 (disons σ_-), alors on trouvera pour sûr, que l'exciton X aura la polarisation complémentaire (donc σ_+). De même si l'on avait mesuré σ_+ pour X_2 , on aurait σ_- pour sûr pour X . Comme la création de l'une ou de l'autre des paires est équiprobable alors l'état du biexciton s'écrit comme la superposition cohérente de ces deux possibilités. L'état du système biexciton-exciton est alors un état enchevêtré en polarisation et donné par :

$$|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma_+ \rangle_X \sigma_- \rangle_{X_2} + |\sigma_- \rangle_X \sigma_+ \rangle_{X_2}) \quad (3.11)$$

Cette possibilité de créer de l'enchevêtrement sur la cascade biexcitonique a été suggéré en 2000 par Benson et al. [8] et n'a toujours pas été observé à ce jour (même si au moment de l'écriture de ces lignes, des bruits courts...). En effet, à cause de l'anisotropie spatiale de la boîte, celle-ci étant plus elliptique que circulaire, l'écart δ_s empêche tout enchevêtrement en polarisation. A présent, grâce aux différences d'énergies et donc au doublet de l'exciton, on a un moyen de dire quelle voie le biexciton a pris pour donner la polarisation π_V et de même pour la polarisation π_H . On montre que la dégénérescence est levée car à présent l'état n'est plus un état pur mais un mélange statistique donné par la matrice densité :

$$\rho = \frac{1}{2}|H_X \rangle \langle H_{X_2}| + \frac{1}{2}|V_X \rangle \langle V_{X_2}| \quad (3.12)$$

Lorsque que l'on va effectuer une mesure sur X_2 et sur X , il y aura de fortes corrélations de polarisations (d'après la Fig 3.10-b), si X_2 est π_H alors X est π_H et réciproquement) et chaque voie est équiprobable. Malgré cela, si l'on effectue une mesure de polarisation dans une base différente, on montre que les corrélations en polarisation sont perdues (on peut montrer que l'état enchevêtré (3.11) est indépendant de la base utilisée, à une rotation près). C'est ce qui a été observé expérimentalement dans le groupe de Michler à Stuttgart sur des boîtes quantiques anisotropes de CdSe dans ZnSe [11]. Nous reviendrons sur ce type d'expériences dans le chapitre 5. La figure 3.10-b) aide à mieux comprendre l'effet catastrophique sur l'enchevêtrement du terme δ_s sur le niveau excitonique. Dans le dernier chapitre, nous verrons qu'il est toutefois possible d'obtenir de l'enchevêtrement grâce aux temps d'émission des photons.

3.3.4 Exciton Chargé sous Champ Magnétique

Pour terminer cette partie nous allons insister sur l'exciton chargé X^- qui s'avérera être potentiellement très important pour nos expériences.

Toutefois, avant de pouvoir travailler sur un exciton chargé, il faut s'assurer que l'on puisse faire la différence entre un exciton neutre et un exciton chargé. Nous avons vu qu'un exciton neutre possède un doublet en polarisation linéaire mais nous avons vu aussi que l'écart énergétique de ce doublet varie beaucoup d'une BQ à une autre. Si la résolution spectrale n'est pas suffisamment bonne, alors on ne peut pas différencier un X (possédant un doublet) d'un X^- (ne possédant pas de doublet puisque le trou a toujours le choix de l'électron avec le "bon spin" pour se recombinaison radiativement, voir la Fig 3.6). Ceci peut être gênant de ne pas savoir sur quel type d'exciton l'on travaille. Il nous faut dès lors un

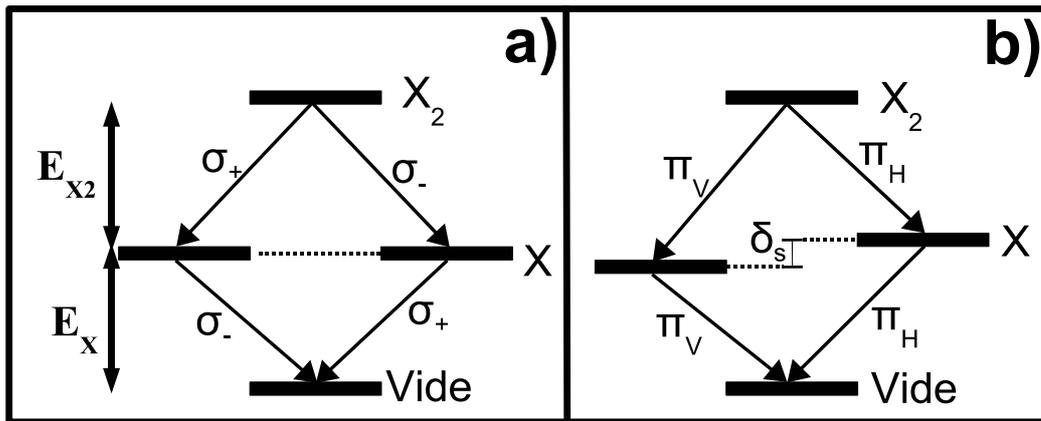


FIG. 3.10 – Diagramme d'énergie et de polarisation de la cascade biexcitonique dans le cas d'une boîte parfaitement isotrope, a) et anisotrope b).

moyen d'expertise sûr de reconnaître les deux types d'exciton. Pour cela, on montre que sous champ magnétique en configuration Voigt, c'est à dire avec le champ magnétique dans le plan des BQs, i.e. orthogonal à l'axe de croissance, il y a une façon très nette de les différencier [10, 11]. Lorsque le champ augmente, un exciton chargé verra sa raie d'émission se séparer en 4 composantes progressivement avec la montée du champ. Cela est dû au fait que pour X^- dans l'état initial, les états de trous se dédoublent (les 2 électrons du trion formant un moment nul non -sujet au champ magnétique). Dans l'état final, en revanche il reste un électron dont les états sont aussi dédoublés sous champ \vec{B} . Nous avons alors 2×2 possibilités d'émission d'où cette séparation en 4 des raies. La Fig 3.11-a) illustre cet effet sur une boîte CdSe.

En revanche, un exciton neutre aura éventuellement son doublet qui va glisser en énergie et dont l'écart va augmenter mais sans augmenter le nombre de raies. On aura toujours une raie d'émission double. La Fig 3.11-b) montre sur un échantillon de boîtes quantiques CdSe un tel phénomène où l'on peut observer un X^- à 519 nm et un X à 517 nm dont la raie ne se quadruple pas. Il nous faut donc, avant de s'intéresser à une raie d'émission particulière, passer les BQs sous champ magnétique transverse avant de pouvoir classifier les différents excitons. On notera que ces mesures ont été effectuées sur le montage prêté par L. Besombes et D. Ferrand.

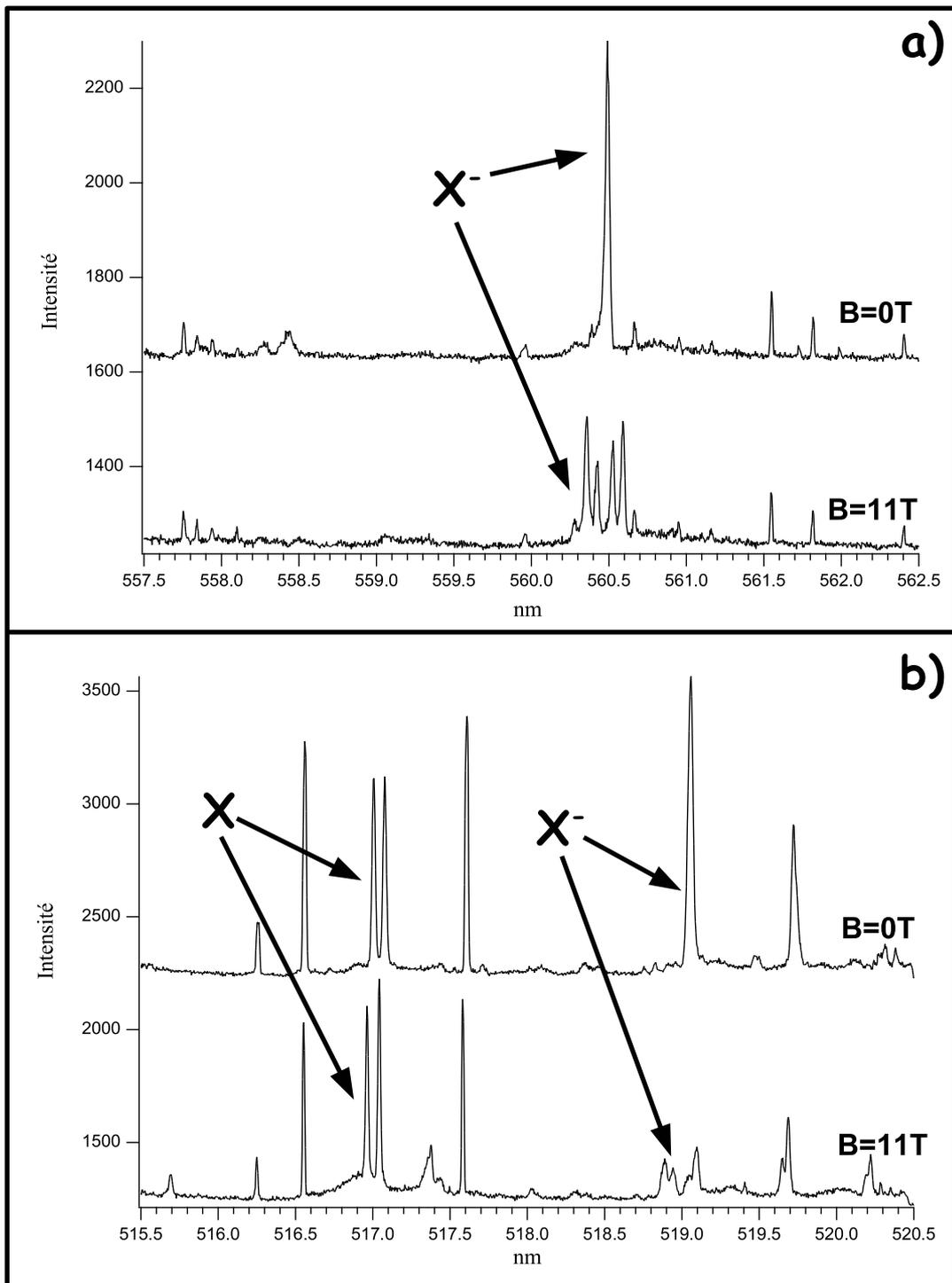


FIG. 3.11 – a) Evolution d'une raie de trion X^- en fonction du champ magnétique sur une boîte de CdSe dans ZnSe. b) Idem que a) mais avec la présence d'un exciton neutre X sur le même spectre.

3.4 Différences de Matériaux : II-VI contre III-V

3.4.1 Différence de Confinement

Nous allons à présent énumérer les différences fondamentales entre les boîtes quantiques faites à base de matériaux II-VI et celles faites à base de matériaux III-V. En effet, outre le fait que, historiquement, il a toujours été plus facile de manipuler des alliages tels que GaAs, InAs ou encore AlGaAs dans le but de faire des puits quantiques ou des successions de puits quantiques (appelés superréseaux), des différences vraiment nettes sont à noter.

Tout d'abord sur le confinement qui est totalement différent. La séparation entre X et X_2 (Δ_{X-X_2} déjà introduit plus haut) dans des boîtes de InAs ou de GaAs est de l'ordre de quelques meV (soit de l'ordre 1 à 1.5 nm) alors que cette séparation peut être de 10 meV (2.5 nm) pour des boîtes de CdTe jusqu'à 25 meV (4.5 – 5 nm) pour des boîtes de CdSe. La figure 3.12 illustre cet écart énergétique pour des boîtes de CdTe en *a*) et pour des boîtes de CdSe en *b*). Dans cet exemple typique, l'écart est de 3.08 nm (12.3 meV) pour CdTe et de 5.27 nm (24.2 meV) pour CdSe.

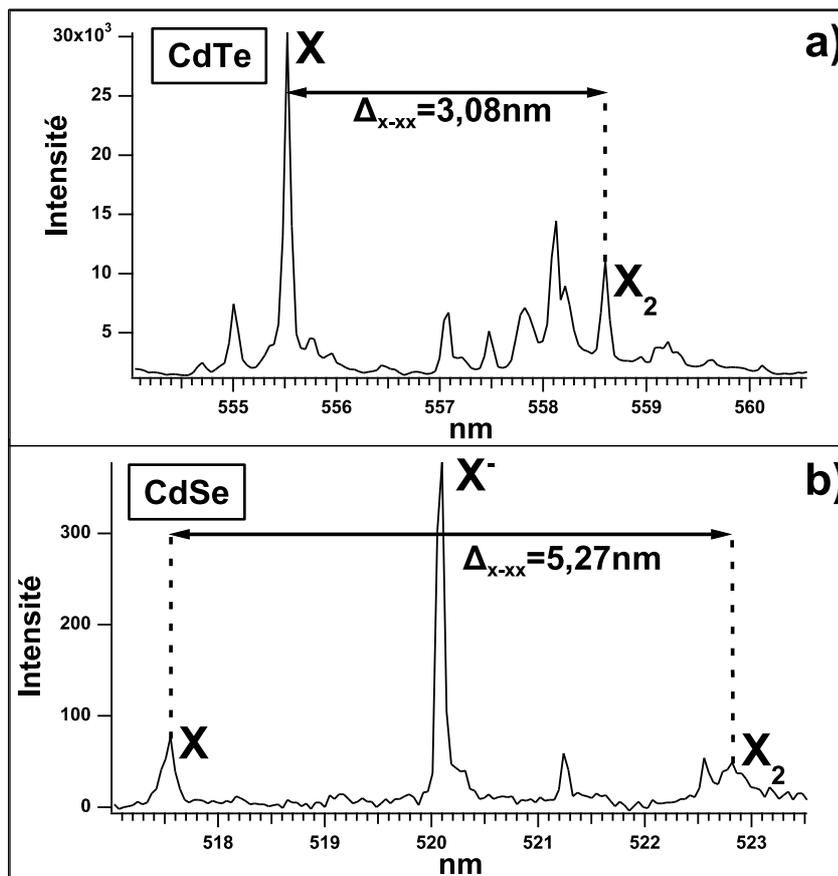


FIG. 3.12 – Ecart en énergie de l'exciton et du biexciton dans des BQs de CdTe a), et de CdSe, b).

Il y a plusieurs façons de déterminer si une raie est le complexe biexcitonique (X_2) d'une autre raie : l'évolution en fonction de la puissance (voir chapitre 5), la durée de vie (voir partie 2.4.2) ou encore l'écart Δ_{X-X_2} théorique ou déjà observé par d'autres groupes ou encore extrapolé d'une valeur issue de mesure sur un puits quantique. Néanmoins, l'écart énergétique étant tellement grand, dans CdSe en particulier, et pour une forte densité de boîtes, il n'est pas toujours facile de discriminer les raies. Cet écart permet à d'autres boîtes d'émettre entre un X et son X_2 associé. La Fig 3.12-b) montre typiquement que plusieurs raies s'intercalent facilement entre X et X_2 avec même une émission majoritaire entre les 2 à 520.1 nm, provenant probablement d'une autre boîte. Toutefois, cette grande valeur de Δ_{X-X_2} est plutôt un avantage qu'un inconvénient. D'abord, contrairement peut être aux BQs III-V, il est plus facile de filtrer le biexciton qui n'est pas trop proche de l'émission de l'exciton. Ensuite, nous verrons au chapitre 6 que cette grande séparation peut faciliter l'excitation à 2 photons X et X_2 en venant placer le laser d'excitation entre les 2 raies d'émissions.

Signalons pour être complet qu'il existe une autre méthode puissante pour déterminer les excitons d'une même boîte. Cette méthode consiste à regarder le décalage en énergie dû à l'effet Stark d'autres charges au voisinage de la boîte. L'effet Stark est global sur la boîte et donc les raies excitoniques et biexcitoniques doivent se décaler de la même façon et de la même valeur [3]. Malheureusement, nous n'avons pas pu se baser sur une telle mesure car ce type d'expérience demande une meilleure résolution spectrale. En effet, les décalages d'énergies en question sont relativement faible, $< 500 \mu eV$, et ne sont visibles que dans des échantillons fortement dopés.

3.4.2 Différence de Force d'Oscillateur

Le fait que les atomes qui au départ constituent le réseau cristallin dans lequel est formé les BQS soient différents les uns des autres (CdTe étant bien plus polaire que GaAs par exemple) aura une conséquence sur la force d'oscillateur de l'exciton formé. La force d'oscillateur traduit typiquement la qualité ou la force avec laquelle une transition va interagir avec le champ électromagnétique via le couplage dipolaire mentionné dans la partie 2.1.3. La force d'oscillateur est donnée par :

$$\Gamma_r = \frac{\hbar}{\tau_r} = \frac{2\pi}{\hbar} | \langle f | \vec{d} \cdot \vec{E} | e \rangle |^2 \rho(\omega_0) \quad (3.13)$$

r voulant dire radiatif, $\vec{d} \cdot \vec{E}$ étant le terme de couplage dipolaire, avec \vec{d} le moment dipolaire et \vec{E} le champ électrique, et $|e\rangle$ et $|f\rangle$ étant les initiaux et finaux, i.e. l'exciton qui se désexcite vers le vide par exemple. $\rho(\omega_0)$ traduit la densité d'états par unité de volume des modes du champ électromagnétique dans le vide.

La force d'oscillateur Γ_r est directement inversement proportionnelle au temps de vie radiatif de la transition impliquée τ_r . Nous avons déjà mentionné au chapitre 2 que ce temps caractéristique est aussi appelé T_1 lorsque l'on s'intéresse à la cohérence d'un système (où T_2 est le temps de cohérence du système, ces considérations seront reprises au chapitre 6).

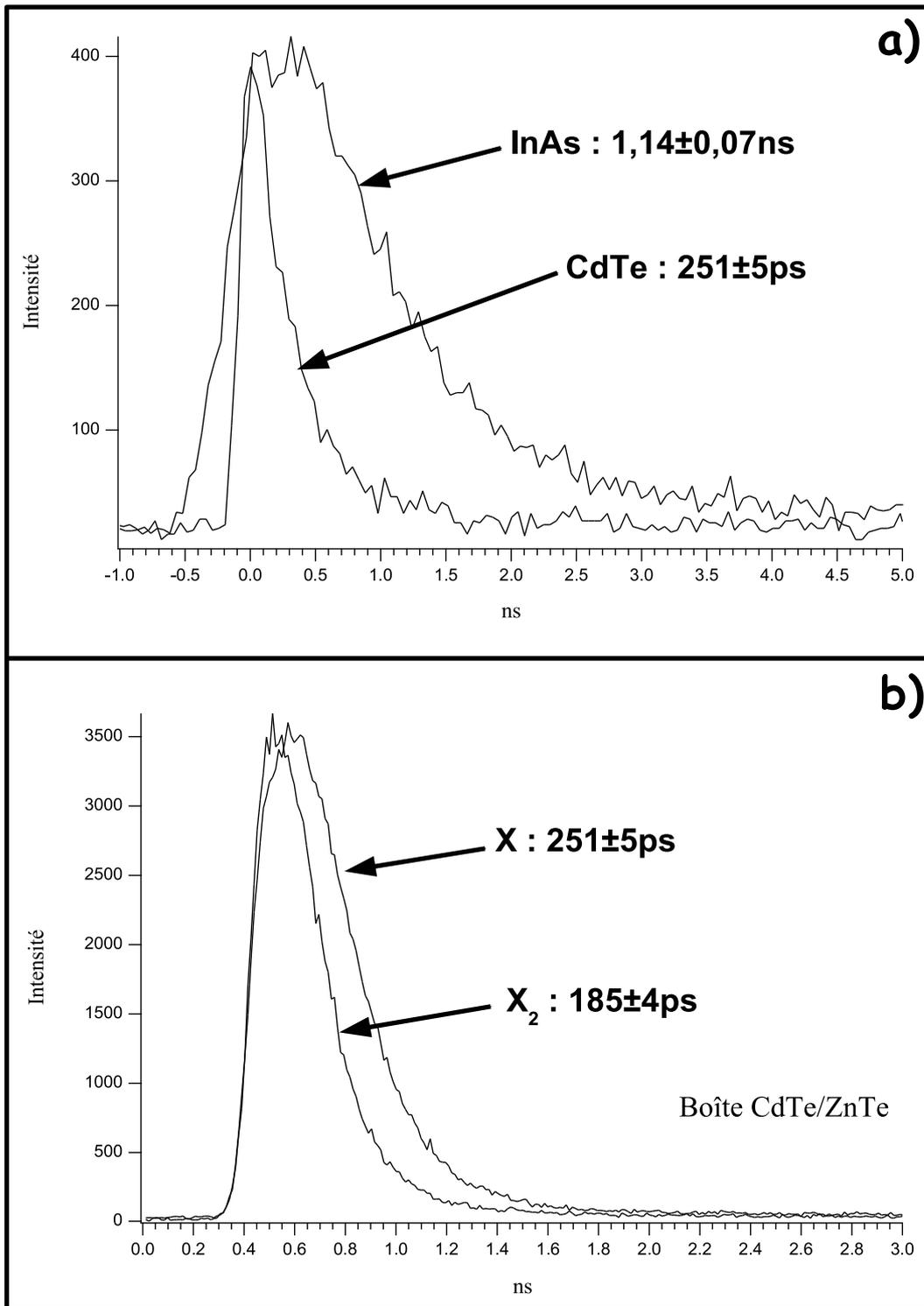


FIG. 3.13 – a) Mesures de temps de vie de l'exciton radiatif dans CdTe et dans InAs. b) Mesures de temps de vie radiatifs d'un exciton dans CdTe et de son biexciton associé.

La Fig 3.13-a) présente des durées de vie typiques de l'exciton dans CdTe et dans InAs pour comparaison. Les valeurs, issues d'un ajustement avec une fonction exponentielle décroissante, sont respectivement de 251 ± 5 ps et de 1.14 ± 0.07 ns. Dans un même îlot, les différences apparaissent également entre le déclin d'un exciton et de son biexciton associé. La Fig 3.13-b) présente les 2 durées de vie de X de 251 ± 5 ps et de son X_2 associé d'une valeur de 185 ± 4 ps. A nouveau, le couplage de X_2 avec le champ électromagnétique ne peut pas être le même que celui de X pour les mêmes raisons précédemment décrites d'où cette différence. Théoriquement dans un modèle qui ne tient pas compte entre autre des interactions coulombiennes, le rapport des temps de vie doit suivre la règle τ_r/n où n représente le nombre d'excitons dans la boîte. Donc pour 2 excitons, la valeur attendu devrait être de 125 ps ce qui n'est pas le cas. Le modèle théorique est trop simpliste et ne tient pas compte de toutes les interactions existantes entre l'exciton et son environnement. De même, la règle n'est pas forcément une baisse du temps de vie lorsque n augmente. Pour 3 excitons, Besombes et al. ont montré qu'une remontée du temps de vie est attendue [5] dans de tels systèmes.

3.4.3 Différence de Longueurs d'Ondes d'Emission

Une autre caractéristique intéressante des boîtes quantiques de la famille des II-VI est que la longueur d'onde d'émission se trouve dans le visible. En fait, cela peut varier du bleu-vert (pour CdSe) à 490 nm jusqu'au orange rouge à 650 nm (pour CdTe). Habituellement les boîtes III-V émettent entre 850 et 1000 nm donc dans le proche infrarouge. Ces longueurs d'ondes ne sont pas toujours bien adaptées pour plusieurs raisons. De nos jours, il y a commercialement 3 types d'activités pour lesquelles les boîtes quantiques peuvent s'avérer intéressantes.

Actuellement, il y a 2 longueurs d'ondes privilégiées pour les réseaux de télécommunications : 1.3 μm et 1.55 μm . En particulier à 1.55 μm la dispersion de la lumière dans la silice devient nulle, donc on peut utiliser des centaines de kilomètres de fibres optiques sans déformer un signal lumineux. Il est clair que pour ce type d'application les îlots II-VI ne sont pas adaptés. Des travaux sur des boîtes quantiques InP émettant à 1.55 μm sont en cours au NRC à Ottawa [12]. Il y a également à l'heure actuelle beaucoup de recherche pour doper ou changer les conditions de croissance de InAs par exemple pour pouvoir au moins atteindre 1300 nm et donc réduire l'énergie d'émission des boîtes. Il y a bon espoir que cela se fasse très prochainement.

Le deuxième marché potentiel est celui des diodes électroluminescente (DEL ou LED pour Light-Emitting Diode). L'industrie automobile est tout particulièrement intéressée par les DEL pour les utiliser en tant que voyants lumineux dans les voitures. Toutefois, il faut que le coût d'une diode soit faible ce qui n'est pas encore le cas. Les boîtes quantiques GaN [13] sont actuellement très étudiées car leurs longueurs d'ondes est dans le proche UV ; elles pourraient donc servir pour pomper un colorant et émettre à n'importe quelle couleur dans une voiture. Bien évidemment, des LEDs vertes à bas prix seraient aussi très intéressantes, d'où le créneau potentiel pour les boîtes quantiques faites de matériaux II-VI. Elles pourraient permettre de faire ce qui n'est pas encore bon marché avec les boîtes GaN. Enfin, dans notre cas, l'intérêt des BQs II-VI est d'avoir à faire à source de

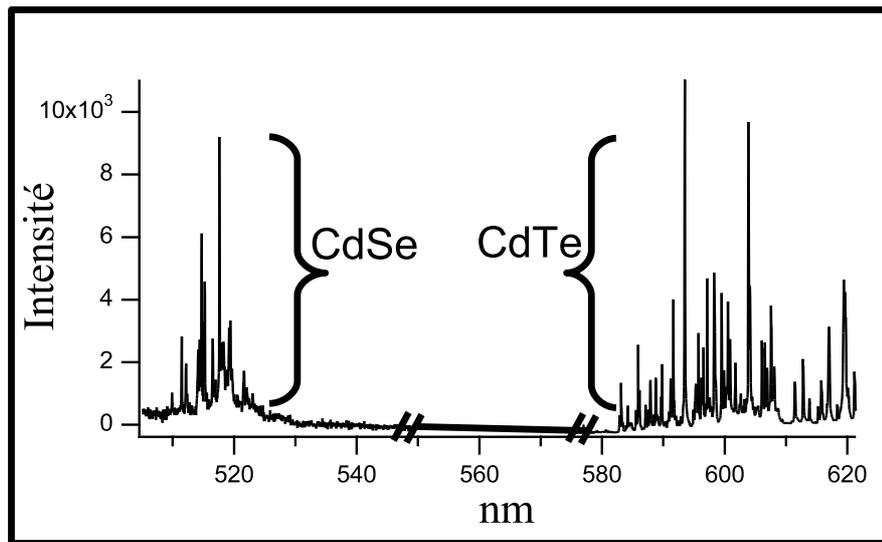


FIG. 3.14 – Spectre de boîtes quantiques CdSe aux basses longueurs d'ondes et de boîtes quantiques CdTe aux hautes longueurs d'ondes.

photons uniques visibles et quasi-accordable dans le sens où une distribution d'émission de BQs est assez large (de 20 à 50 nm).

La Fig 3.14 montre le spectre de 2 ouvertures de $0.2 \mu m$ de côté de boîtes de CdSe entre 510 et 530 nm et de CdTe entre 580 et 620 nm. Les BQs CdSe émettent à plus haute énergie que les BQs CdTe.

3.4.4 Différence de Densités

Pour terminer, soulignons une dernière différence majeure entre des boîtes quantiques II-VI et des boîtes quantiques III-V qui n'a pas d'implications physiques directes mais qui toutefois techniquement s'avère être très importante. Cette dernière différence est la densité de boîtes obtenue avec l'un ou l'autre matériau. Typiquement, une densité aussi faible que $10^8/cm^2$ peut être accessible avec des BQs InAs dans GaAs.

Pour cela, il faut incliner l'échantillon par rapport à l'axe de croissance de manière à obtenir une "zone frontière" c'est à dire une zone entre une forte densité de boîtes et une zone sans boîtes. Dans la zone intermédiaire, on peut alors avoir de l'ordre de un îlot par μm^2 . La résolution d'un microscope étant justement de l'ordre du micromètre, pour isoler une ou quelques boîtes, il faut pouvoir atteindre cette faible densité au risque d'exciter trop de boîtes quantiques.

Dans les matériaux II-VI, la technique d'inclinaison n'a pas vraiment été démontré jusqu'à présent, dès lors la densité est toujours beaucoup plus importante, de l'ordre de $10^{10}/cm^2$. Cela veut dire beaucoup de boîtes excitées sous un microscope. Il faut alors avoir recours à d'autres techniques pour isoler quelques boîtes. La première est l'utilisation d'un masque en surface et la deuxième est la formation de plateaux, de mésas autour desquels on a enlevé toute la matière. Nous reviendrons sur ces considérations techniques dans

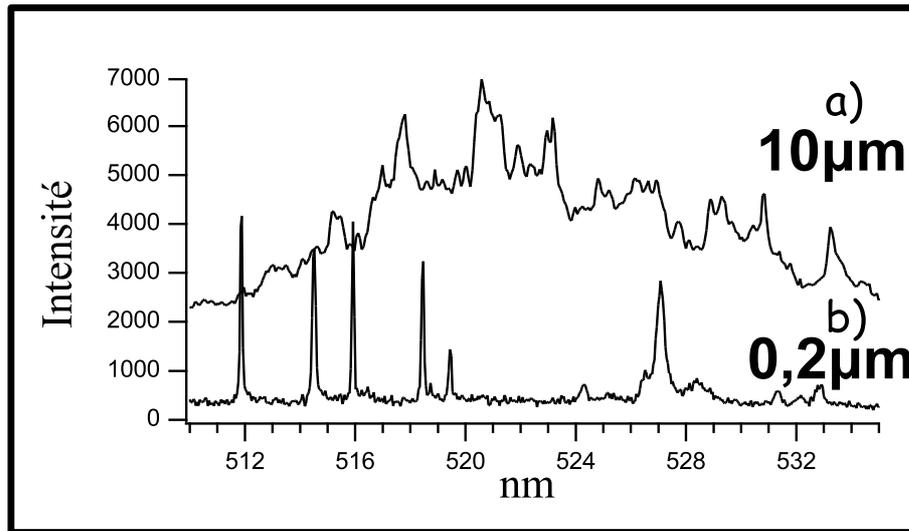


FIG. 3.15 – Différence de densité de boîtes quantiques de CdSe pour des ouvertures de $10 \mu m$ en a) et de $0.2 \mu m$ de côté en b).

le prochain chapitre et nous montrerons des images par microscope électronique d'un masque. La figure 3.15-a) présente le spectre d'une ouverture de $10 \mu m$ de côté de BQs de CdSe présentant une grande largeur spectrale sans résolution de raies uniques dues au grand nombre d'îlots excités. La Fig 3.15-b) présente cette fois-ci la même expérience avec les mêmes boîtes mais avec une ouverture de $0.2 \mu m$ de côté. On voit apparaître clairement un petit nombre de raies d'émission seulement dû au faible nombre de BQs excitées grâce à cette sélection spatiale.

Bibliographie

- [1] *Growth by molecular beam epitaxy and characterization of InAs/GaAs strained-layer superlattices.*
L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, et G. Le Roux, Appl. Phys. Lett. **47**, 1099 (1985).
- [2] *II-VI quantum dot formation induced by surface energy change of a strained layer.*
F. Tinjod, B. Gilles, S. Moehl, K. Kheng, et H. Mariette, Appl. Phys. Lett. **82**, 4340 (2003).
- [3] *Hidden symmetries in the energy levels of excitonic artificial atoms.*
M. Bayer, O. Stern, P. Hawrylak, S. Fafard, et A. Forchel, Nature **405**, 923 (2000).
- [4] *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots.*
D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, et D. Park, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
- [5] *Giant optical anisotropy in a single InAs quantum dot in a very dilute quantum-dot ensemble.*
I. Favero, G. Cassabois, A. Jankovic, R. Ferreira, D. Darson, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, A. Badolato, P. M. Petroff, et J. M. Gérard, Appl. Phys. Lett. **86**, 41904 (2005).
- [6] *Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface.*
L. Besombes, K. Kheng, et D. Martrou, Phys. Rev. Lett. **85**, 425 (2000).
- [7] *Spectroscopie optiques de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI.*
L. Besombes, Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier (2001).
- [8] *Regulated and Entangled Photons from a Single Quantum Dot.*
O. Benson, C. Santori, M. Pelton, et Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. **84**, 2513 (2000).
- [9] *Triggered polarization-correlated photon pairs from a single CdSe quantum dot.*
S.M. Ulrich, S. Strauf, P. Michler, G. Bacher, et A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **83**, 1848 (2003).
- [10] *Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots.*
M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A.A. Gornunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T.L. Reinecke, S.N. Walck, J.P. Reithmaier, F. Klopff, et F. Schäfer, Phys. Rev. B **65**, 195315 (2002).

- [11] *Single-hole spin relaxation in a quantum dot.*
T. Flissikowski, I.A. Akimov, A. Hundt, et F. Henneberger, Phys. Rev. B **68**, 161309 (2003).
- [12] *Optical spectroscopy of single, site-selected, InAs/InP self-assembled quantum dots.*
D. Chithrani, R.L. Williams, J. Lefebvre, P.J. Poole, et G.C. Aers, Appl. Phys. Lett. **84**, 978 (2004).
- [13] *High-density and size-controlled GaN self-assembled quantum dots grown by metalorganic chemical vapor deposition.*
M. Miyamura, K. Tachibana, et Y. Arakawa, Appl. Phys. Lett. **80**, 3937 (2002).
- [14] *Few-particle effects in single CdTe quantum dots.*
L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, Phys. Rev. B **65**, 121314 (2002).

Chapitre 4

Montage Expérimental

Sommaire

4.1	Cryogénie	86
4.1.1	Cryostat à Doigt Froid	86
4.1.2	Cryostat à Bain d'Hélium	87
4.2	Systèmes Lasers	89
4.2.1	Laser Argon Continu	89
4.2.2	Laser Titane-Saphir Impulsionnel	90
4.2.3	Doublage de Fréquence	91
4.2.4	Autres lasers	93
4.3	Microscopie et Microphotoluminescence	93
4.3.1	Rudiments de Microscopie	93
4.3.2	Sélection Spatiale pour Microphotoluminescence	96
4.3.3	Lentille à Immersion Solide	97
4.3.4	Imagerie de la Surface	100
4.4	Spectroscopie et Détection	102
4.4.1	Spectromètres et Caméras CCD	102
4.4.2	Détecteurs de Photons Uniques	103
4.5	Montages TCSPC et Hanbury-Brown Twiss	108
4.5.1	Compteur de Photons Uniques à Corrélations Temporelles	108
4.5.2	Montage de Hanbury-Brown Twiss et Fonction de Corrélations	109
4.6	Mesure de la Cohérence Optique	110
4.6.1	Interféromètre de Michelson	110
4.6.2	Performances Obtenues	111
4.7	Miscellanés	113
4.7.1	Filtrage Supplémentaire	113
4.7.2	Transmission et Taux de Collection	114
4.7.3	Survol du Montage Final	115

Epitomé

Lorsque cette thèse a débuté la plupart de l'équipement nécessaire à produire les résultats présentés dans ce manuscrit n'était pas présent. Nous n'avions notamment pas de cryostat à hélium qui est l'élément indispensable à toute expérience d'optique dans les solides. Etant pratiquement parti de zéro, il est apparu important de décrire en détail les éléments du montage final et donc de consacrer un chapitre entier aux techniques opératoires. Une grosse partie de ce travail de thèse a été de développer de nouveaux outils évoluant vers plus de complexité du montage. Les objectifs étaient d'abord des études spectroscopiques, puis des études de corrélation de photons et des études temporelles, pour comprendre la dynamique des phénomènes. Enfin dans la dernière année, nous nous sommes intéressés à la cohérence de l'émission des boîtes et à l'excitation de la photoluminescence. Pour toutes ces raisons, seront décrits le système cryogénique, les systèmes lasers employés, les techniques de microscopie à haute résolution spatiale et de microphotoluminescence (μ PL). Il sera question aussi de décrire les principes de spectroscopie et de détection de photons uniques puis le fonctionnement des modules à comptage de photons uniques dans un montage dit Hanbury-Brown et Twiss déjà mentionné au chapitre 2. Pour terminer, il sera décrit l'interféromètre de Michelson utilisé et les divers autres éléments indispensables à la plupart des résultats obtenus notamment l'emploi d'un réseau de diffraction supplémentaire pour un meilleur filtrage spectral. Précisons enfin que l'expérience a été complètement démontée et remontée 2 fois au cours de cette thèse, entraînant à chaque fois certaines complications mais qui ont toujours pu être surmontées et une perte de temps qui elle, n'a pas pu être rattrapée évidemment.

4.1 Cryogénie

4.1.1 Cryostat à Doigt Froid

Au cours de cette thèse nous avons utilisé deux types de cryostat : un cryostat à doigt froid et un cryostat à bain d'hélium. Le principe du cryostat à doigt froid est simplement de refroidir un échantillon par contact thermique. La figure 4.1-a) illustre le principe avec une chambre à vide dans laquelle on place le porte-échantillon avec l'échantillon à l'étude collé dessus. Ce porte-échantillon est lui-même relié à une bouteille d'hélium liquide par une canne de transfert. Après avoir mis la bouteille sous pression, l'hélium liquide passe par la canne de transfert qui va l'amener jusqu'au bout du porte-échantillon. Le liquide va alors se vaporiser en gaz très froid et refroidir ce doigt froid.

Dès lors, on assure un bon contact thermique à l'aide de pâte d'argent ou de graisse à vide (qui vont aussi servir de colle) entre l'échantillon et le doigt froid. Il n'y a donc aucune communication entre l'intérieur du doigt froid dans lequel se glisse la canne de transfert et la chambre à vide. Par ce principe, on peut descendre jusqu'à 4.7 à 5 K assez facilement et passer de 300 K à 5 K en 2 h au plus, pompage de la chambre à vide inclus. Le cryostat utilisé est de la marque Oxford Instruments, Superconducting Division, modèle *Microstat He*. L'autonomie à froid est seulement dépendante de la quantité d'hélium restant dans le dewar/bouteille d'He. Typiquement 8 à 10 h de travail à froid en continu est facilement

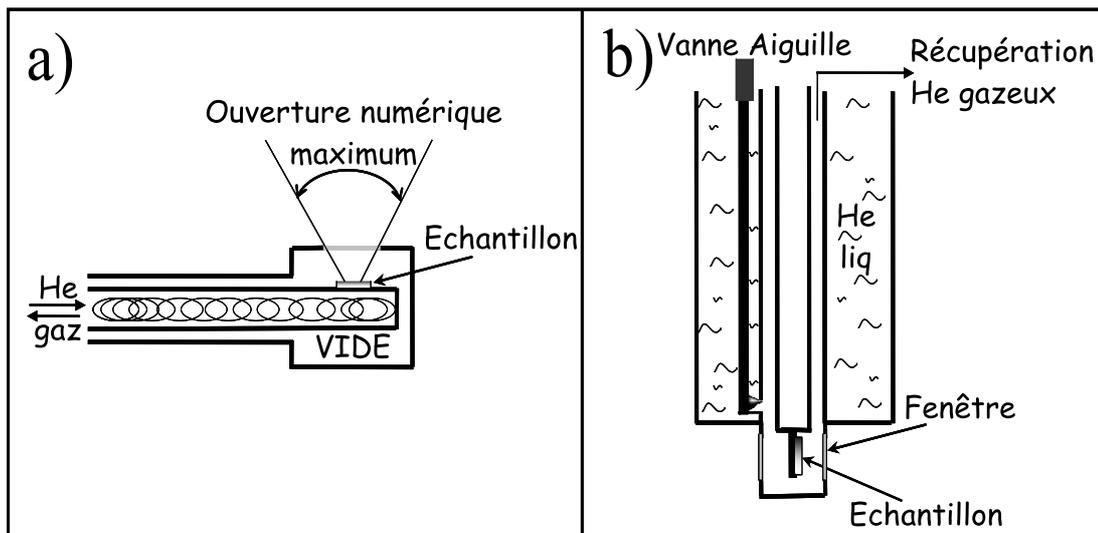


FIG. 4.1 – a) Cryostat à flux d'hélium. b) Cryostat à bain d'hélium.

réalisable et la consommation est de 15 à 25 L pour une telle journée. L'ajustement du flux d'hélium se fait par une vanne aiguille dans la canne de transfert et permet éventuellement de changer la température de l'échantillon. La consommation pourrait certainement être réduite par l'utilisation d'une pompe qui va aspirer l'hélium par la sortie récupération d'hélium (donc baisser la pression au niveau du doigt froid) au lieu de le pousser en mettant la bouteille en surpression.

La stabilité thermique est de 0.1 à 0.2 K sur les 8 ou 10 h d'utilisation. Mécaniquement, le système est plutôt stable tant que l'on ne touche pas la bouteille ou que l'on ne s'en approche pas à moins de 1 m . Microscopiquement, la dérive mécanique du porte-échantillon est de l'ordre du micromètre tout les 15 min . Cela une fois que la température est stabilisée après 1 h . De plus, d'une journée sur l'autre, des bonnes conditions de travail imposent de pouvoir retrouver la même boîte quantique et les dérives de mise à chaud-mise à froid sur 2 jours sont d'au plus de 20 μm . Nous sommes donc toujours dans le voisinage de la boîte qui nous intéresse.

L'accès optique se fait par une fenêtre de 1 mm d'épaisseur et à 4.5 mm au-dessus de l'échantillon. Ceci impose dès lors que nous placions un objectif de microscope en dehors du cryostat pour pouvoir collecter la lumière émise par le système. Cela va donc limiter l'ouverture numérique maximale accessible. Ces considérations seront reprises plus en détails dans la section 4.3 plus loin.

4.1.2 Cryostat à Bain d'Hélium

Le deuxième cryostat utilisé est à nouveau de la marque Oxford Instrument, modèle *OptiBath He*. Cette fois-ci, le principe est de transférer directement de l'hélium liquide dans la chambre où se trouve l'échantillon. La figure 4.1-b) illustre ce principe où l'on peut voir que la communication entre la chambre à échantillon et le réservoir d'hélium liquide,

d'une capacité de 4 L, se fait à l'aide d'une vanne aiguille accessible depuis le haut du cryostat. Grâce à cette vanne, on peut choisir de travailler en mode flux gazeux ou en mode bain. Le mode flux gazeux consiste à avoir la vanne pratiquement fermée de telle sorte que le liquide s'évapore lorsqu'il accède à la chambre à échantillon. Ce 'vent' d'hélium très froid va ensuite refroidir l'échantillon par conduction thermique. Via la vanne aiguille, tout comme le doigt froid, on peut faire varier la température de l'échantillon. Pour travailler en mode bain, on ouvre complètement la vanne et l'hélium est alors transféré dans la chambre à échantillon. Il est à noter que par soucis de simplification, la figure 4.1-b) ne montre pas les chambres à vide d'isolement entre chaque partie, notamment entre la chambre à échantillon et le réservoir.

On remarquera que ce modèle ne possède pas l'habituelle garde d'azote entre l'extérieur du cryostat à température ambiante et le tank d'hélium à 4.2 K (entrelacés de chambres à vide à nouveau). La garde se fait par les vapeurs gazeuses ici d'hélium très froides qui se vaporisent du réservoir d'He. L'avantage de cette conception est en principe d'éviter les vibrations mécaniques engendrées par le bouillonnement incessant de l'azote liquide et donc d'augmenter la stabilité mécanique. C'est du moins ce que prétend la documentation d'Oxford avec une fluctuation thermique de l'ordre de 0.1 K. Ce cryostat devrait aussi offrir une meilleure uniformité thermique contrairement à la technique du doigt froid qui présente un gradient de température important. De plus, un cryostat à bain offre d'autres possibilités. En effet, en mode bain d'hélium on peut à présent, en pompant à l'aide d'une pompe externe sur le liquide, atteindre la température d'hélium superfluide en dessous de 2.17 K et même aller jusqu'à 1.6 K. En fait, en mode bain, si l'on ne passe pas en hélium superfluide, les bouillonnements, cette fois-ci de l'hélium, sont tellement importants qu'il est impossible de faire des expériences d'optique. Durant ce travail de thèse, nous n'avons pas eu l'occasion de travailler en mode bain d'hélium, nous avons toujours travaillé en flux. Lorsque la vanne aiguille n'était pas correctement ajustée, il est arrivé à plusieurs reprises que le porte-échantillon se remplisse de liquide et empêche toute expérience. Il fallait alors attendre une heure ou deux que l'hélium s'évapore.

Optiquement, le mode opératoire est aussi différent du précédent. Avec le cryostat à bain, nous ne pouvons plus placer un objectif de microscope à l'extérieur du cryostat, il serait trop loin et l'efficacité de collection de lumière serait très faible. Sans parler aussi du fait qu'il faut à présent traverser 3 fenêtres au lieu d'une entre la sortie du microscope et son point focal. Nous avons dû alors introduire un objectif à l'intérieur du cryostat, au bout du porte-échantillon. La partie 4.3 rentrera plus en détails sur le montage optique. Il est à noter que nous avons connu énormément de difficultés à bien utiliser ce cryostat. Nous avons passé plusieurs mois à essayer de faire marcher au mieux ce cryostat avec des succès mitigés. Les spécifications attendues par Oxford Instruments pour la consommation ne sont en fait pas données et l'autonomie à froid est censée être $\geq 10 h$. A ce jour, il n'est toujours pas facile d'effectuer un transfert d'hélium du dewar externe au tank. Les chances de réussite ne sont pas de 100% mais plutôt de 50%. Ensuite, l'autonomie n'est certainement pas celle donnée. Une journée de 6 h à froid était une bonne journée d'expérience. Il n'est pas clair à qui imputer la faute et les problèmes rencontrés. Est-ce que nous ne faisons pas correctement ce qui est recommandé par le constructeur? Est-ce que le cryostat connaît un problème spécifique tel qu'une fuite à froid par exemple? Est-ce une question de conception au départ? Toutes ces questions doivent avoir absolument

une réponse précise dans la suite si l'on veut pouvoir réaliser des expériences de physique dans de bonnes conditions et pendant des durées importantes.

4.2 Systèmes Lasers

4.2.1 Laser Argon Continu

L'un des avantages déjà décrit au chapitre précédent d'étudier des boîtes quantiques issues de matériaux de la famille des II-VI est qu'elles émettent de la lumière dans le visible. Typiquement de 550 à 630 nm pour les boîtes de CdTe dans ZnTe et de 490 à 540 nm pour les boîtes de CdSe dans ZnSe. L'autre paramètre important, pour savoir à quelle longueur d'onde il faut exciter, est de connaître l'énergie de gap du matériau barrière, i.e. 2.39 eV (518 nm) pour ZnTe et 2.61 eV (475 nm) pour ZnSe. Ces valeurs sont données pour une température de 300 K , pour 4 K (qui était notre température de travail la plupart du temps) les valeurs sont de 2.26 eV (547 nm) pour ZnTe et 2.71 eV (453 nm) pour ZnSe. Cela indique où se placer en énergie par rapport à l'émission des boîtes et à la couche de mouillage (voir chapitre 2). Pour moitié de nos résultats nous avons utilisé un laser à argon ionisé en régime continu, de marque Coherent, modèle *Innova 90C*, 5 W . Ce laser nous permet d'utiliser plusieurs longueurs d'ondes : 457.8 nm , 476 nm , 488 nm , 496 nm , 501.7 nm et 514.5 nm . Au moins plusieurs dizaines de mW sont accessible sur chaque raie. On peut atteindre 1 W avec les raies à 488 et à 514.5 nm mais cela ne nous a jamais été utile. La lumière émise est monomode et fortement polarisée verticalement. Il est à noter qu'à la sortie, le faisceau est étendu de 1 mm à 7 nm de diamètre à l'aide d'un télescope. La raison pour étaler le faisceau laser est de pouvoir couvrir toute la pupille d'entrée d'un microscope standard, d'environ 5 à 6 mm de diamètre. A nouveau, nous reviendrons sur ce point dans la partie 4.3.

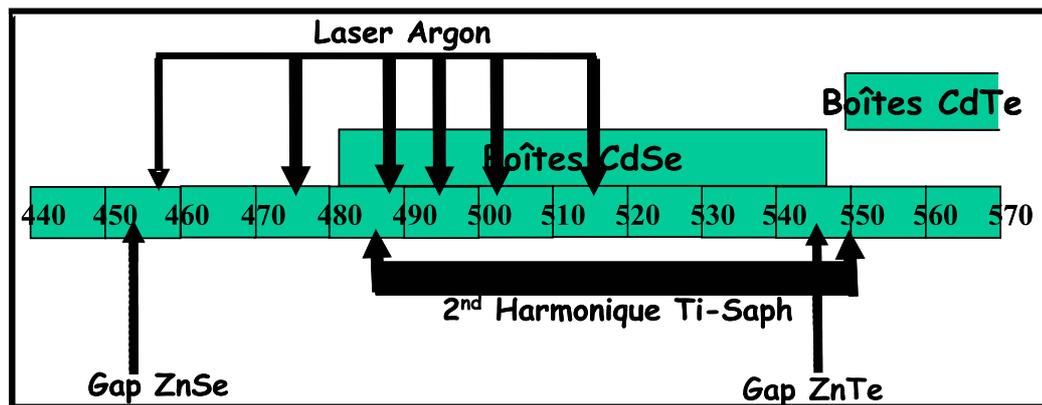


FIG. 4.2 – Gamme d'énergie d'émission des échantillons étudiés et possibilités d'excitation laser à notre disposition.

La figure 4.2 rappelle les paramètres importants en énergie et longueurs d'onde. On y trouve les longueurs d'onde d'émission des boîtes, les énergies de gap des matériaux barrières à 4 K et le spectre couvert par nos divers systèmes lasers. On peut d'ailleurs voir qu'un laser argon permet d'être hors du gap pour des boîtes quantiques de CdSe mais pas de CdTe.

4.2.2 Laser Titane-Saphir Impulsionnel

Pour l'étude dynamique d'un système, il est nécessaire de pouvoir utiliser un laser impulsionnel pour effectuer des mesures de temps de vie par exemple. Le laser à impulsions utilisé est un laser Titane-Saphir à blocage de modes. C'est le modèle *Tsunami* de Spectra-Physics pompé par un laser *Millenia* de 10 W . Pour des raisons qui seront évidentes au paragraphe suivant, nous avons choisi le jeu de miroirs qui nous donne accès à la gamme extrême de ce type de laser vers les hautes longueurs d'ondes, c'est à dire entre 960 et 1100 nm . A l'aide d'un filtre de Lyot biréfringent, nous pouvons balayer cette gamme spectrale. Dans cette gamme spectrale, la puissance en sortie est loin de celle possible à 780 nm (qui est à son maximum) mais pour 8.5 W de pompe, nous pouvons obtenir jusqu'à 600 mW à 1030 nm et jusqu'à 320 mW à 1070 nm . Avec un autocorrélateur prêté par la société Spectra-Physics, nous avons pu mesurer la largeur t_{auto} des impulsions de 1.3 ± 2 ps . Selon les spécifications du constructeur, l'allure des impulsions laser est une fonction en $sech^2(at)$. Par soucis de simplicité dans les calculs ci-dessous, nous supposons que les impulsions sont gaussiennes et non pas en $sech^2(at)$. Cela ne change pas beaucoup les résultats. Ayant mesuré $t_{auto} = 1.3 \pm 2$ ps , il faut à présent en déduire la vraie largeur temporelle t_{pulse} . Selon l'allure des impulsions considérées, un facteur forme existe entre t_{pulse} et t_{auto} . On a $t_{pulse} = 0.707 t_{auto}$ pour des impulsions gaussiennes (et 0.648 pour des impulsions en $sech^2(at)$). A présent, pour des impulsions transformées de Fourier, à 1030 nm , la relation entre la largeur spectrale des impulsions et leur durée temporelle est donnée par :

$$\begin{aligned} \Delta\lambda &= \frac{\lambda^2}{c t_{pulse}} \frac{2 \ln 2}{\pi} \\ &= \frac{\lambda^2}{0.707 c t_{auto}} \frac{2 \ln 2}{\pi} \\ &= \approx 0.85 \text{ nm} \end{aligned} \tag{4.1}$$

La Fig 4.3 montre un spectre du laser Ti-Saph en régime continu (courbe avec ronds pleins), en régime impulsionnel (courbe avec losanges pleins) et un ajustement gaussien de cette dernière (courbe en traits pleins gris). En régime continu, un ajustement gaussien donne une largeur de 0.185 ± 0.003 nm qui est en fait donnée par la largeur spectrale du filtre de Lyot. En mode impulsionnel la largeur mesurée du spectre est de 0.979 ± 0.015 nm , assez proche de la valeur théorique trouvée plus haut de 0.85 nm . On note que le taux de répétition est de 80 MHz . Tout comme le laser Argon, la lumière est fortement polarisée linéaire verticale en sortie du laser. Nous terminerons pour préciser que même à ces longueurs d'ondes extrêmes et en bord de gain d'un cristal Titane-Saphir, la stabilité

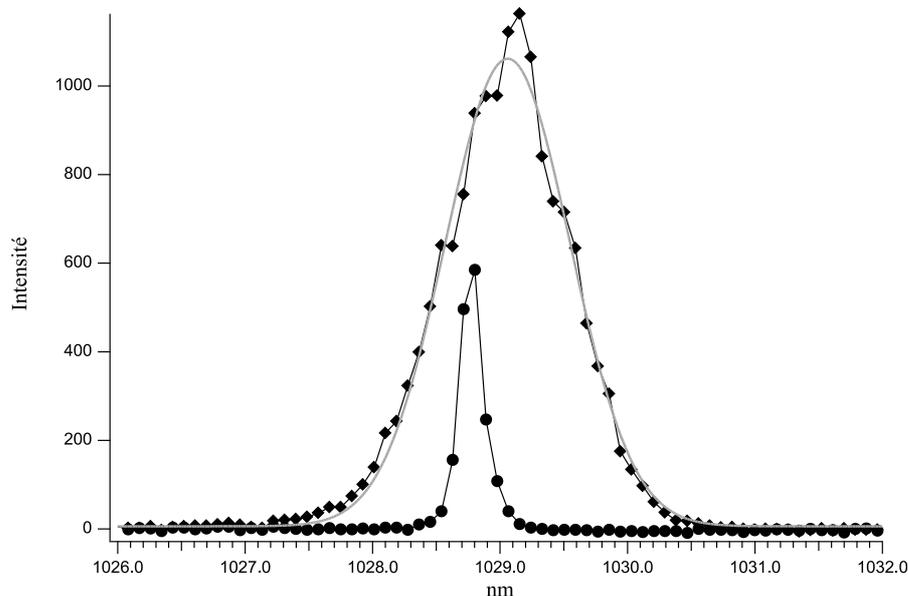


FIG. 4.3 – Spectre du laser en régime continu (courbe avec ronds pleins), en régime impulsionnel (courbe avec losanges pleins) et ajustement gaussien de cette dernière (courbe en traits pleins gris).

pouvait atteindre plusieurs heures sans que le blocage de modes ne soit perdu et que l'on ait à retoucher quoi que se soit.

4.2.3 Doublage de Fréquence

Pour pouvoir exciter directement à l'énergie ou proche de l'énergie des boîtes quantiques CdSe, nous doublons en fréquence le laser impulsionnel. Ayant des impulsions très courtes, l'énergie-crête par impulsion est très importante et est suffisante pour se placer dans le régime de l'optique non-linéaire. Pour cela, nous focalisons la lumière laser sur un cristal LBO doubleur de fréquence de longueur 15 *mm*. Ce cristal travaillant en accord de phase non critique, il est accordable en changeant sa température et non pas en angle. Il est placé à l'extérieur et à la sortie du laser Titane-Saphir dans un four réglé en température [1].

Ce type d'accord de phase, ne touchant pas l'inclinaison du cristal, évite de désaligner le faisceau en sortie du LBO et donc de désaligner le reste du montage. Typiquement, les longueurs d'ondes accessibles sont dans la gamme 480 – 550 *nm* correspondant à une gamme de température de 130 à 250 °C. Cela correspond exactement à des énergies qui nous placent en résonance avec les boîtes CdSe (voir Fig 4.2). Ceci peut s'avérer très important pour la suite. Dans le Chapitre 6, ces considérations seront reprises en détails.

La Fig 4.4-a) présente la courbe mesurée de dépendance avec la température de la longueur d'onde d'émission du laser doublé en fréquence. La Fig 4.4-b) représente elle l'acceptance en température de ce cristal. Une fois la température atteinte et stabilisée, le contrôleur est capable de garder la température constante à 0.1 degré près, ce qui,

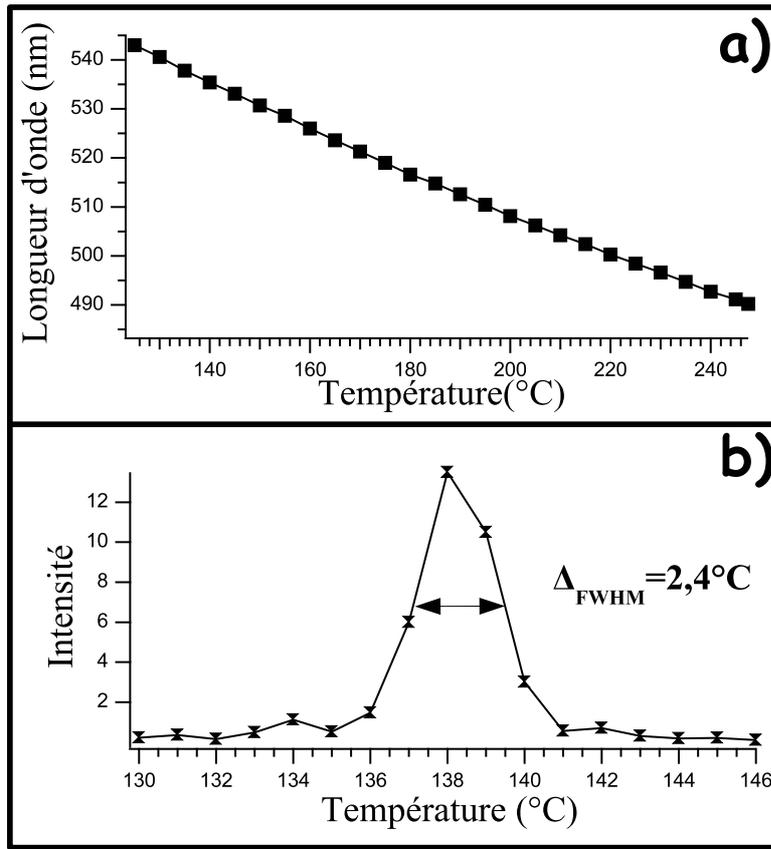


FIG. 4.4 – a) Dépendance avec la température de la longueur d'onde d'émission du laser doublé en fréquence. b) Acceptance en température du doublage d'une fréquence donnée.

au vu de la figure 4.4-b), est largement suffisant. Cela nous permet de pouvoir travailler pendant plusieurs heures sans retoucher la consigne de température du cristal de LBO, la limitation étant due à la perte éventuelle du blocage de modes du laser de pompe. En régime impulsif, un ajustement gaussien donne une largeur spectrale de $0.253 \pm 0.003 \text{ nm}$. Cette valeur est presque 4 fois plus faible que celle du fondamental. Cela est un résultat classique de conversion de fréquence car l'acceptance spectrale n'est jamais de 1 à plusieurs nm . La conversion de seconde harmonique n'est jamais large bande en longueur d'onde.

Typiquement les puissances de doublage de fréquence obtenues sont de 110 mW à 515 nm (pour une puissance infrarouge de 600 mW) et de 35 mW à 535 nm (pour une puissance infrarouge de 320 mW). Pour la polarisation en sortie du doubleur, s'agissant d'une coupe du cristal en type I, la polarisation est linéaire mais cette fois-ci horizontale, perpendiculaire à celle du laser Titane-Saphir.

4.2.4 Autres lasers

Finalement, nous noterons l'emploi d'un autre laser qui nous a servi à faire quelques expériences à des énergies cette fois-ci au-dessus de l'énergie de gap du matériau barrière de ZnSe (voir la Fig 4.2). Pour cela, nous avons utilisé une diode laser bleue émettant quelques mW à 415 nm , donc bien au dessus du gap.

4.3 Microscopie et Microphotoluminescence

4.3.1 Rudiments de Microscopie

D'après la relation d'incertitude d'Heisenberg donnée par :

$$\Delta x \cdot \Delta p \geq \hbar \quad (4.2)$$

on voit que plus une onde est localisée spatialement plus l'incertitude sur sa quantité de mouvement, donc sa direction, est grande. Si l'on traduit cela en termes d'effets de la diffraction, cela veut dire que tout objet de taille fini – ce que nous avons tendance à utiliser dans un laboratoire – diffracte la lumière. A titre d'exemple, considérons une lentille de diamètre D et de focale f . Comme tout autre objet celle-ci va diffracter la lumière incidente, que l'on supposera monochromatique et de longueur d'onde $\lambda = 515\text{ nm}$. On peut montrer que la lentille étant de géométrie circulaire, la loi d'intensité suivie par la lumière au point focal est une fonction de Bessel du premier ordre donnant lieu à la fameuse figure en anneaux dites "tâche d'Airy". La largeur du pic central, i.e. le diamètre du premier anneau, donc la taille de spot w la plus petite possible, est donnée par :

$$w \approx 2.44 \frac{f \cdot \lambda}{D} = 4.8\ \mu m \quad (4.3)$$

L'application numérique a été faite pour une lentille de diamètre 1 pouce (2.54 cm) et pour une focale de 10 cm . La figure 4.5 illustre cet effet et présente les paramètres importants pour notre argumentation. On gardera en tête qu'à tout système optique est généralement associé une ouverture numérique ou **Numerical Aperture** en anglais qui est donnée par $NA = n_0 \cdot \sin \theta$ où θ est le demi-angle maximum possible vu du point focal lorsque toute la lentille est illuminée (voir la Fig 4.5). n_0 est l'indice du milieu dans lequel est placé la lentille que nous prendrons comme étant l'air, donc $n_0 = 1$. D'après la Fig 4.5 on a $\tan \theta = (D/2)/f$, d'où on en déduit que :

$$\tan \theta = \frac{D}{2 \cdot f} = \frac{NA}{n_0 \cdot \sqrt{1 - (NA/n_0)^2}} \approx \frac{NA}{n_0} \quad (4.4)$$

l'approximation étant valide typiquement pour $NA < 0.25$ c'est à dire pour des petits angles. On en déduit que :

$$NA \simeq \frac{D}{2f} n_0 \quad (4.5)$$

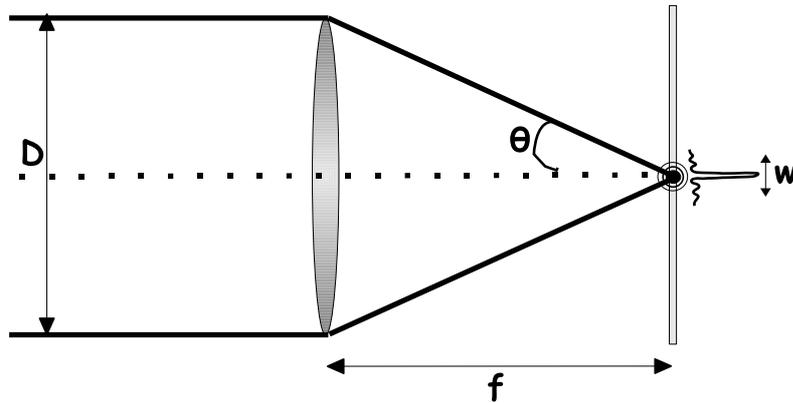


FIG. 4.5 – Grandeurs pertinentes pour le calcul d’une ouverture numérique.

qui est habituellement la formule utilisée pour calculer des diamètres de faisceaux et des focales de lentilles adaptées à une ouverture numérique donnée d’un appareil tel qu’un spectromètre par exemple. Un objectif de microscope n’est rien d’autre qu’une succession de lentilles placées de manière à corriger les différentes aberrations notamment chromatiques (dues au fait que l’indice d’un matériau est fonction de la longueur d’onde). On peut l’approximer par une seule lentille de focale équivalente et avec une pupille d’entrée donnée.

Nous avons utilisé deux types de microscope, le premier étant le modèle *LMPlanFI* de Olympus. Le grandissement est de 20, la distance focale effective de 10 mm et $NA = 0.4$. Ce microscope ayant une grande distance de travail de 8 mm est utilisé avec le cryostat à flux d’hélium pour une focalisation externe. Le deuxième est de Melles Griot, le modèle *04OAS016*, de distance de travail beaucoup plus courte de 0.42 mm, de focale de 4.6 mm et de $NA' = 0.65$. Le grandissement dans ce cas étant de 40. Cet objectif est lui beaucoup plus compact et plus robuste aux différences de températures et surtout peut être utilisé à la température de l’hélium liquide. Nous l’avons donc placé à l’intérieur du cryostat à bain. On notera que pour se faire, nous avons dû enlever toutes les parties plastiques superflues et nous avons dû effectuer des trous dans la monture et les supports de lentille du microscope pour être sûr que l’hélium liquide puisse s’infiltrer partout librement et ne pas causer de dégâts. L’objectif Olympus n’aurait très certainement pas résisté à toutes ces contraintes thermiques.

Lorsque le microscope est monté à l’extérieur du cryostat à doigt froid, ce dernier est monté sur des tables de translations xyz de précision micrométrique alors que le microscope lui-même est monté sur des translateurs piézoélectriques de résolution nanométrique cette fois-ci. Dans le cas du cryostat à bain, l’objectif est dans le cryostat. Cette fois-ci, l’échantillon est au point focal du microscope et est monté sur translateurs piézoélectriques de précision nanométrique de chez Attocube. La figure 4.6 montre un schéma de ce montage expérimental. La figure 4.7 quant à elle montre une photographie de la queue de la canne insérée dans le cryostat, donc montre une photographie du schéma

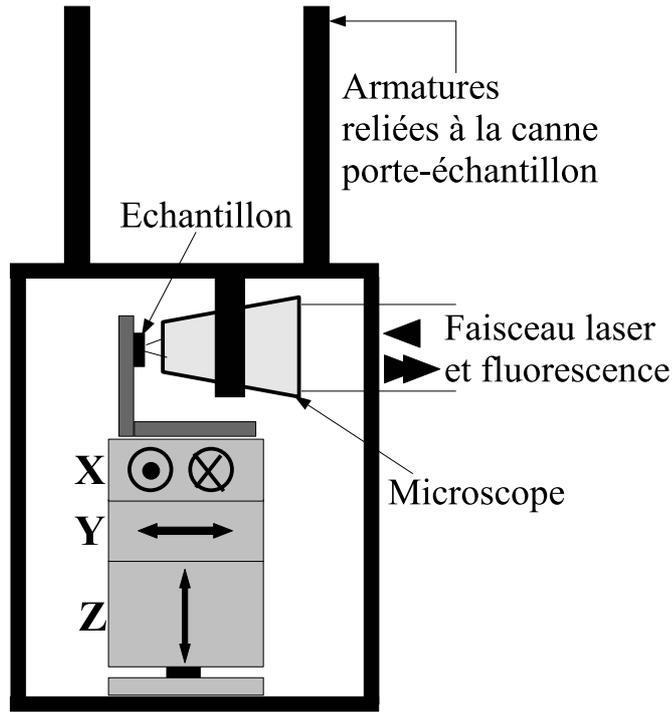


FIG. 4.6 – Schéma de l'empilement d'éléments piézoélectriques (de marque Attocube) servant à bouger l'échantillon au point focal de l'objectif de microscope.

présenté en figure 4.6. On peut voir l'objectif de microscope ainsi que les éléments piézo-électriques montés les uns sur les autres et portant le porte-échantillon. Enfin, rappelons que pour un émetteur qui émettrait dans tout l'espace, donc complètement isotrope, son angle solide d'émission est de $\Omega_i = 4\pi$. Or l'angle solide "vu" par une lentille d'ouverture numérique NA et d'angle au sommet θ , est donné par $\Omega_l = 2\pi(1 - \cos \theta)$. Dès lors, le rapport $r = \Omega_l/\Omega_i = (1 - \cos \theta)/2$ nous donne le pourcentage de lumière collectée pour une ouverture numérique donnée. Pour $NA = 0.4$ et 0.65 on a respectivement $r = 4.2 \%$ et $r = 11.8 \%$. On voit sur cet exemple tout l'intérêt des grandes ouvertures numériques qui augmentent l'efficacité de collection. Un facteur de presque 3 dans ce cas. En utilisant les formules (4.3) et (4.5), on en déduit que :

$$w = 1.22 \frac{\lambda}{NA} \quad (4.6)$$

Les diamètres de tâches ultimes sont dans les cas qui nous intéressent $w_{0.4} \approx 1.67 \mu m$ et $w_{0.65} \approx 0.96 \mu m$ pour une excitation laser avec respectivement l'ouverture numérique de 0.4 et de 0.65.

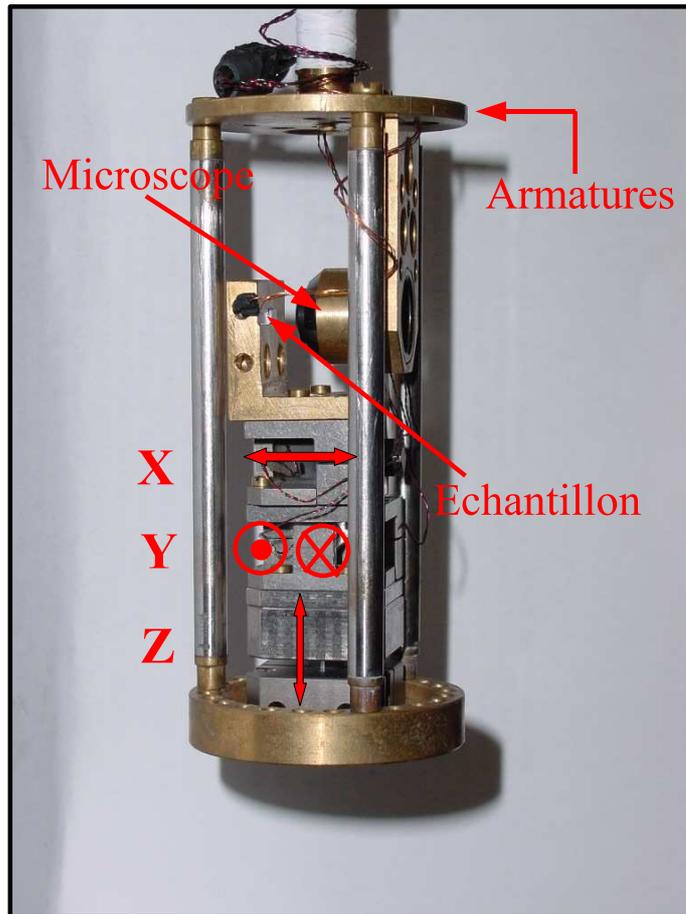


FIG. 4.7 – Photographie de la queue de la canne insérée dans le cryostat avec aperçu de l’objectif de microscope ainsi que des éléments piézoélectriques Attocube montés les uns sur les autres et portant le porte-échantillon.

4.3.2 Sélection Spatiale pour Microphotoluminescence

Dans le chapitre précédent, nous avons vu que la densité de boîtes quantiques pouvait atteindre $2.10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [2]. Typiquement pour un faisceau laser focalisé sur $1 \mu\text{m}^2$, qui est à peu près l’ordre de grandeur avec les ouvertures numériques utilisées d’après (4.3), nous avons environ 200 boîtes excitées. Réparties sur environ 15 nm cela donne une raie excitonique tout les 0.075 nm et nous ne pouvons pas résoudre cela avec notre montage (voir section 4.4.1). Il faut donc trouver une autre solution pour sélectionner spatialement une quantité moins importante de boîtes. Il y a plusieurs façons de faire et la plus répandue est le dépôt d’une fine couche d’aluminium d’une épaisseur d’environ 100 nm sur la surface de l’échantillon épitaxié fini. On peut ensuite percer des trous de taille submicrométrique pouvant aller jusqu’à un carré de 200 nm de côté. Cela réduit donc le nombre de boîtes par 25 ce qui nous donne seulement une poignée d’îlots restant sous le microscope. Ce masque ainsi réalisé peut être périodique et posséder un maillage bien défini à l’avance. La figure 4.8 montre une image d’un masque typique prise avec un microscope électronique à balayage. A l’endroit du cercle est entouré une ouverture de 200 nm que l’on voit

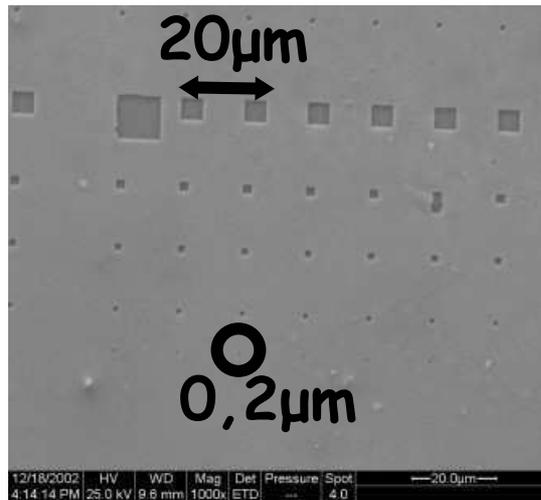


FIG. 4.8 – Image d’un masque d’aluminium déposé sur la surface d’un plan de boîtes quantiques. Image réalisée à l’aide d’un microscope électronique à balayage.

difficilement mais que l’on devine grâce à la périodicité du maillage. L’emploi d’une telle technique est appelé Microphotoluminescence ou μ PL. On comprend mieux à présent au vu des dimensions des trous possibles, la nécessité d’avoir un positionnement submicrométrique pour le faisceau laser. Les éléments piézoélectriques sont donc cruciaux dans ce cas.

On notera que l’autre technique de sélection est celle dite de mésas ou plateaux. L’idée est la même que précédemment sauf que cette fois-ci, on retire la matière en dehors de certaines zones (les mésas donc). Cela implique que les boîtes quantiques se trouvent au niveau de ces plateaux et plus en dehors puisqu’elles ont été enlevées par attaque chimique. A nouveau les mésas peuvent avoir des tailles variables tout comme la technique de masque. Chaque méthode possède des avantages et des inconvénients. Les principaux facteurs sont la collection de la lumière qui est toujours plus réduite dans le cas de masque et la diffusion spectrale qui est toujours plus importante dans les mésas. En effet, dans le cas de mésas, le piégeage en surface est favorisé. Bayer et al. [4] ont démontré très clairement une dépendance de la largeur spectrale des boîtes quantiques en fonction de la taille des mésas. Plus les mésas sont larges, plus la largeur s’affine. L’hypothèse avancée est donc un piégeage de charges en surfaces des mésas qui tendent à élargir les raies.

Nous avons étudié quelques BQs avec mésas et trouvé dans certains cas un élargissement et dans d’autres non. Cependant une étude plus systématique [4] a été effectuée au sein de notre équipe qui tend à corroborer les observations de Bayer et Forchel [4]. Il serait intéressant d’étudier ce phénomène en spectroscopie de Fourier pour réellement trancher.

4.3.3 Lentille à Immersion Solide

Les lentilles à immersion solide ou encore **Solid Immersion Lenses** (SIL) sont des lentilles très particulières de matériaux d’indice optique n_{sil} élevé. Nous allons démontrer

que l'usage de telles lentilles améliore la collection de la lumière. Pour cela, considérons la loi de Snell-Descartes pour 2 milieux d'indices différents n_s (s pour substrat qui représente la partie dans laquelle se trouve les boîtes quantiques) et n_{air} . la condition sur l'angle β_s incident dans le matériau substrat pour qu'un rayon lumineux sorte effectivement est donnée par $\beta^{s \rightarrow air} = \arcsin(n_{air}/n_s)$. Dès lors, il apparaît clairement que si l'on vient placer un autre matériau d'indice n_{sil} tel que $n_{air} < n_{sil} < n_s$ entre l'air et le semiconducteur à l'étude, l'angle critique d'extraction des rayons lumineux va augmenter. Le rapport sera alors de $\beta^{s \rightarrow sil} = \arcsin(n_{sil}/n_s)$ avec $\beta^{s \rightarrow sil} > \beta^{s \rightarrow air}$. Le problème est ensuite transférer du matériau d'indice n_{sil} à l'air d'indice n_{air} . Cette fois-ci, la réfraction n'est plus un problème car la SIL est hémisphérique. Ce qui veut dire que tout rayon extrait en son centre (il faut donc venir placer l'émetteur au centre de la lentille à immersion solide) sera radial sur la surface de sortie et ne sera donc pas réfracté à l'interface SIL-air contrairement à l'interface semiconducteur-air. On notera que le champ de vision sous la SIL est alors restreint (de l'ordre de $40 \mu m$) car ce principe de non-réfraction dû aux rayons émis par le centre n'est valable que précisément si l'on est bien au centre de la SIL.

Le rapport des angles entre sans SIL et avec SIL est alors donné par :

$$\zeta = \frac{\beta^{s \rightarrow sil}}{\beta^{s \rightarrow air}} = \frac{\arcsin(n_{sil}/n_s)}{\arcsin(n_{air}/n_s)} \quad (4.7)$$

Dans notre cas, nous avons utilisé des lentilles semi-hémisphériques en ZrO_2 d'indice $n_{sil} = 2.16$ et de diamètre 0.5 mm . Pour le semiconducteur étudié, on a supposé que $n_{ZnSe} = n_s = 2.7$ et que $n_{air} = 1$. Le rapport sera alors de $\zeta \approx 53/22 = 2.4$ donc un gain en angle assez conséquent. On peut montrer que le gain en collection est proportionnel à $n_{SIL}^2 = 4.7$. Pour cela, considérons le rapport de angles solides entre la situation avec SIL et la situation sans SIL. D'après l'équation vu dans la partie 4.3.1 on a :

$$r = \frac{\Omega_{avec}}{\Omega_{sans}} = \frac{1 - \cos(n_{sil}/n_s)}{1 - \cos(n_{air}/n_s)} \approx \frac{1 - (1 - 1/2(n_{sil}/n_s)^2)}{1 - (1 - 1/2(n_{air}/n_s)^2)} \approx n_{SIL}^2 \quad (4.8)$$

La figure 4.9 reprend ce principe d'augmentation de la collection de la lumière à l'aide d'une lentille à immersion solide On voit sur la Fig 4.9 que certains rayons en pointillés ne peuvent pas sortir du substrat en l'absence de SIL en raison de la réflexion totale interne. Avec SIL, ces mêmes rayons peuvent alors être extraits du matériau semiconducteur. Nous avons pu montrer en effectuant des mesures de saturation que le gain de collection des photons sur notre montage était de 3 à 4. La Fig 4.10 montre 2 courbes de saturation d'une même raie excitonique avec et sans SIL. A saturation de l'émission excitonique, on voit que le gain est d'environ 3.5.

On remarquera que les boîtes quantiques sont en général à moins de 100 nm de la surface et que pour les raisons déjà décrites dans 4.3.2, la boîte peut être considérée comme étant à la surface du substrat et comme étant ponctuelle pour le microscope de collection. Des études sur les SIL ont montré que la perte de gain en collection était essentiellement dues au fait que l'émetteur (donc ici la boîte quantique) n'est pas exactement au centre de la SIL. Etant donné que la BQ peut être considérée comme étant véritablement à la surface de l'échantillon, seul un gap d'air éventuel (au moment du collage de la SIL) entre échantillon et la lentille de ZrO_2 pourrait détériorer cette efficacité de collection.

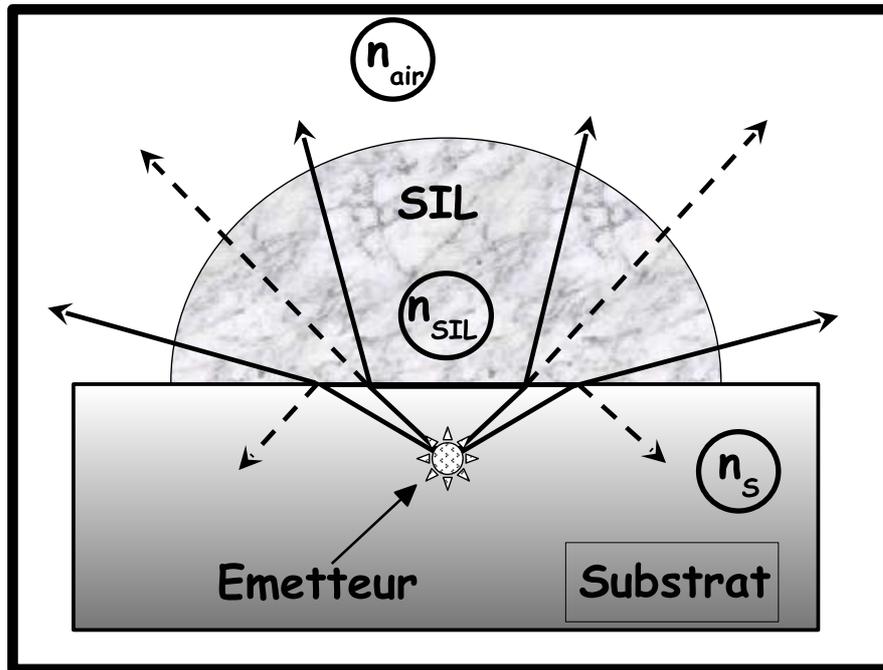


FIG. 4.9 – Schéma de principe d'une SIL de ZrO_2 , d'indice $n_{sil} = 2.16$ accolée à un échantillon de semiconducteur II-VI d'indice $n_s \approx 2.7$.

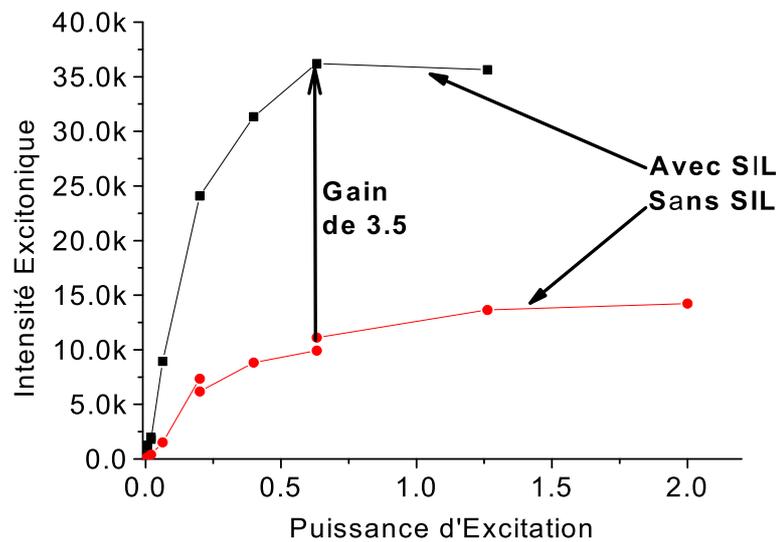


FIG. 4.10 – Effet du gain en collection de la lumière avec et sans SIL. Les courbes représentent la saturation d'une raie excitonique.

Pour nos expériences, il ne nous a pas été facile de mettre en place une SIL particulièrement lorsque l'on voulait la placer exactement au-dessus d'une ouverture bien précise possédant une BQ bien précise que nous voulions étudier. Pour cela, la technique était de regarder sous un microscope ce que nous faisons. La SIL était d'abord placée de façon grossière et baignait dans une goutte d'éthanol. Puis à l'aide d'un positionneur de notre fabrication (et toujours sous loupe binoculaire) nous pouvions espérer placer la SIL à moins de $10\ \mu m$ de l'ouverture visée. Le positionneur était en fait 3 tables de translations xyz avec un petit fil de métal collé (avec de la colle séchée au bout du fil pour ne pas rayer l'échantillon ou la lentille) qui venait pousser la lentille à immersion solide. Une fois placée, on attendait que l'alcool s'évapore. La SIL se colle alors par adhésion moléculaire à la surface de l'échantillon. Il faut tout de même éviter par la suite les chocs le plus possible au risque de décoller la lentille. On notera pour finir cette section que l'utilisation de la SIL a déjà été validée auparavant dans le cas de puits quantiques très fins et dans le cas de boîtes quantiques. On se référera aux articles suivants pour cela [5, 6, 7].

4.3.4 Imagerie de la Surface

Pour terminer cette partie, nous allons exposer le montage d'imagerie nécessaire à l'observation de la surface d'un échantillon. En effet, même avec un masque d'aluminium déposé sur la surface de l'échantillon de boîtes quantiques, il faut encore pouvoir voir les trous micrométriques ou submicrométriques de manière à pouvoir travailler sur la même ouverture et donc sur la même boîte du jour au lendemain. La Fig 4.11 décrit le montage d'imagerie employé. L'idée est simplement de venir éclairer avec une lampe blanche la surface de l'échantillon et pour être sûr de bien tout éclairer, il faut travailler en faisceau divergent. Le faisceau va alors éclairer uniformément l'échantillon sur tout le champ vu par le microscope (de focale f_{MO}). L'image ainsi créée de la surface sera réfléchiée par l'échantillon et ressortira en faisceau parallèle. Une lame semi-réfléchissante va alors prélever une partie de ce faisceau qui sera refocalisée sur une simple webcam commercial par une lentille de focale f_w . Le rapport des focales $G = f_w/f_{MO}$ donne le grandissement de l'image obtenu sur la puce CCD de la webcam. Pour $f_w = 300\ mm$ et $f_{MO} = 10\ mm$, le grandissement G était de 30 avec l'objectif Olympus. Soit une taille de $300\ \mu m$ pour une ouverture de $10\ \mu m$. La taille d'un pixel de la webcam est de $6\ \mu m \times 6\ \mu m$.

La figure 4.12 montre un cliché pris par notre montage sur la webcam. On notera que l'on perd de la qualité d'image lorsque l'on enregistre une image avec la webcam. Cette perte est certainement dû à une mauvaise numérisation au moment de l'enregistrement. Le faisceau laser excitateur est aussi représenté.

Signalons aussi que sur les derniers échantillons que nous possédions, des coordonnées gravées sur le masque ont été ajoutées. Cela facilite grandement la recherche d'une région particulière qui peut s'avérer très difficile surtout lorsque l'on s'est éloigné complètement de la région d'intérêt. Pour s'assurer du bon rapport de grandissement on peut évaluer les grandeurs caractéristiques. Sachant que la largeur totale du chip est de $4\ mm$ avec un grandissement de 30, tout le chip représente donc $130\ \mu m$. Au vu de la figure 4.12, un trou de $10\ \mu m$ peut être vu et l'on voit bien qu'il y a à peu près 10 à 12 fois (donc $\sim 120\ \mu m$) la place de mettre un tel trou sur la largeur de l'image. Le rapport de grandissement est

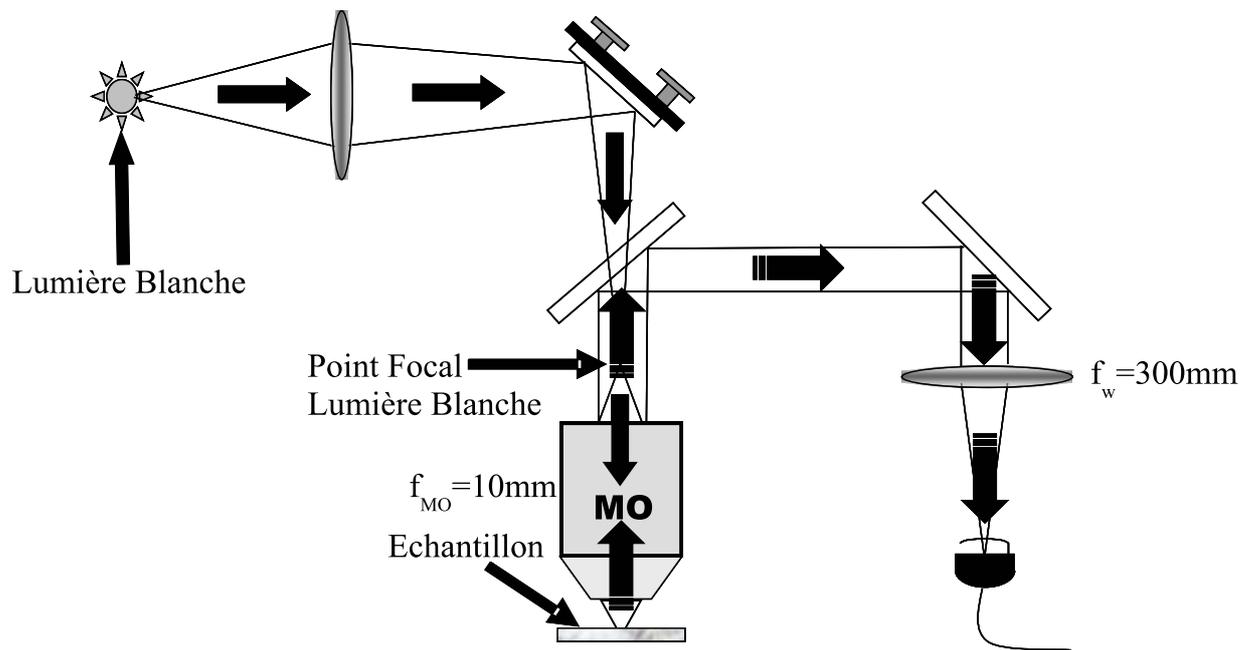


FIG. 4.11 – Schéma du montage d'imagerie en lumière blanche de la surface d'un échantillon. MO signifiant objectif microscope.

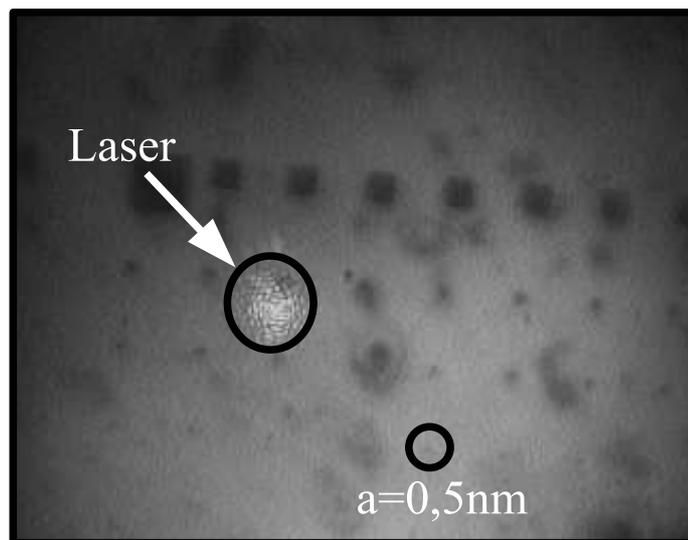


FIG. 4.12 – Surface d'un échantillon masqué prise avec l'ensemble microscope+lentille+webcam.

donc bien respecté. Entourée par un rond se trouve être une ouverture de 0.5 nm . En imagerie réelle, on pouvait deviner ces ouvertures ce qui est suffisant pour travailler.

Pour conclure cette partie, nous signalerons que nous avons essayé de travailler avec des lentilles asphériques en lieu et place de microscope dans le cas où nous travaillons avec un cryostat à bain. L'avantage de ces lentilles est qu'elles ne craignent pas d'être mise à froid. De plus, ces lentilles offrent des ouvertures numériques relativement grandes tout en gardant des distances de travail acceptable i.e. plus grandes qu'un millimètre. Toutefois, ces lentilles sont fortement chromatiques et les différences de distances focales entre lumière blanche, laser d'excitation et collection maximale sont importantes, de plusieurs dizaines de microns. Nous avons alors éclairé la surface de l'échantillon avec des diodes électroluminescentes émettant à peu près à la longueur d'onde des boîtes. Même dans ce cas, de grandes difficultés ont été rencontrées. Nous avons donc décidé de repasser à un microscope où les aberrations chromatiques (aussi bien venant de l'objectif Melles Griot que de l'objectif Olympus) sont bien moins grandes. Même comme cela, nous avons eu quelques problèmes lorsque nous avons excité des échantillons en lumière infrarouge avec absorption à 2 photons. Nous reviendrons sur ces expériences plus en détails dans le chapitre 6.

4.4 Spectroscopie et Détection

4.4.1 Spectromètres et Caméras CCD

La première étape essentielle de l'étude des boîtes quantiques ou de tout autre dipôle rayonnant est d'étudier le spectre d'émission pour savoir combien de boîtes sont excitées par le laser à travers le microscope et dans quel régime l'on se place par rapport à la saturation par exemple. Savoir si l'on a la présence du biexciton ou non (voir chapitre 3) est aussi d'importance. La spectroscopie de ces îlots quantiques impose donc l'utilisation de spectromètres à réseau. Durant cette thèse nous avons utilisé essentiellement 2 spectromètres (2 sont nécessaires pour des mesures de corrélations de photons de différentes longueurs d'ondes) : un de focale 50 cm avec un réseau de 1200 tr/mm , modèle *500IS* de Chromex, et un autre de focale 27 cm avec un réseau de 1200 tr/mm également, modèle *270M* de Spex/Jobin-Yvon. Chaque spectromètre peut travailler en mode spectrographe/CCD ou en mode monochromateur. Le mode CCD donne accès à tout le spectre en même temps sur une caméra CCD à refroidissement à azote. La Fig 4.13 montre une raie typique du spectre d'une lampe spectrale au Ne prise à la caméra CCD. On remarquera que la largeur des raies nous donne la résolution spectrale ultime puisque le spectre de lampes spectrales est très fin dans les conditions normales d'utilisation. En l'occurrence, un ajustement lorentzien nous donne une largeur à mi-hauteur de $\Delta\lambda_r \approx 0.05 \text{ nm}$ ou encore $\Delta E_r \approx 150 \mu\text{eV}$ à 640 nm .

Une fois que nous avons décidé de travailler sur telle ou telle raie, on peut alors basculer un petit miroir en sortie qui va envoyer la lumière sur la fente de sortie du monochromateur pour pouvoir sélectionner une et une seule raie d'émission vers des détecteurs suffisamment sensibles pour compter des photons uniques. La transmission totale des

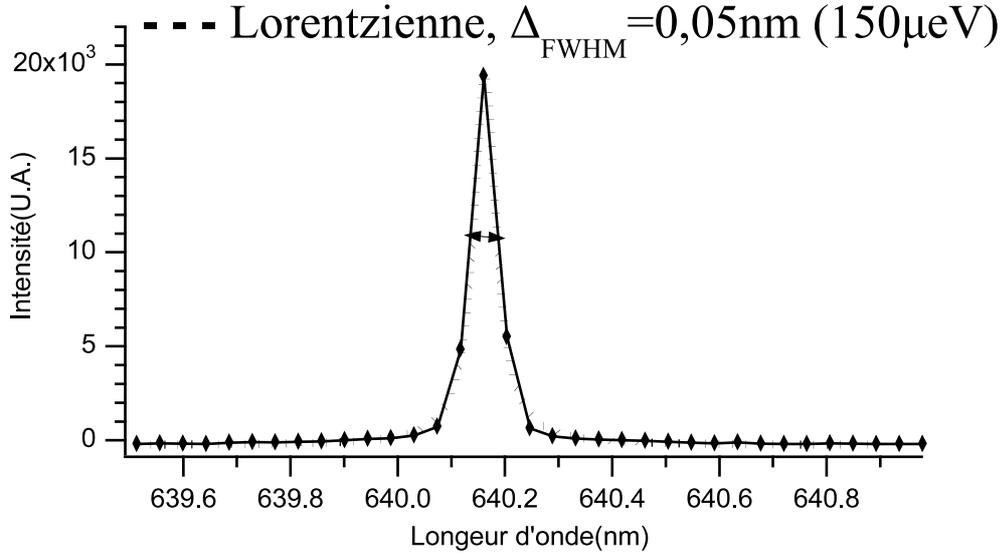


FIG. 4.13 – Résolution spectrale du spectromètre Chromex de focale 50 cm. Cela correspond à la résolution spectrale ultime du montage.

spectromètres est de 34% en polarisation *s* et de 43% en polarisation *p* pour le Chromex. Le monochromateur de 27 cm de focale possède lui une transmission totale de 51% en polarisation *s* et de 56% en polarisation *p*. La perte de lumière des monochromateurs et la dépendance en polarisation sont principalement dûes aux réseaux eux-même qui ne réémettent pas toute la lumière dans le même ordre. Ils peuvent aussi être fortement dépendant de la polarisation selon qu'elle est parallèle ou orthogonal aux traits du réseau.

Un mot sur l'efficacité quantique des caméras CCD qui n'est que de $2 \pm 1\%$ à 633 nm. La mesure a été faite en atténuant un laser HeNe très fortement avec des densités calibrées. Ensuite, on compte le nombre de photons observés sur le pic laser vu par la CCD. Les CCD sont telles que 1 coup lu est équivalent à un photon. En supposant que l'énergie E (relié à la puissance par $P = E/t$) est donnée par $E = n\hbar\omega$ où n est un nombre de photons. Dès lors, on peut comparer ce que l'on devrait avoir en entrée du spectromètre et ce que compte la caméra CCD. Cette valeur de quelques pourcents n'est pas en accord avec les spécifications du constructeur puisqu'à cette longueur d'onde l'efficacité d'une caméra est donnée pour 40%. La taille des pixels est de $25 \mu\text{m}$ et les chips sont de 1024 par 256 pixels pour le Chromex donnant accès à une plage de 35 nm. Pour le Jobin-Yvon, le chip est de 512 par 512 pixels donnant accès à une plage de 45 nm.

4.4.2 Détecteurs de Photons Uniques

Photomultiplicateurs

Nous avons été amené à utiliser deux types de détecteurs sensibles à un très petit nombre de photons. Les premiers, les plus utilisés dans nos expériences, sont des photomultiplicateurs (PM) à galette de microcanaux modèle *R1645U* de Hamamatsu. Avec

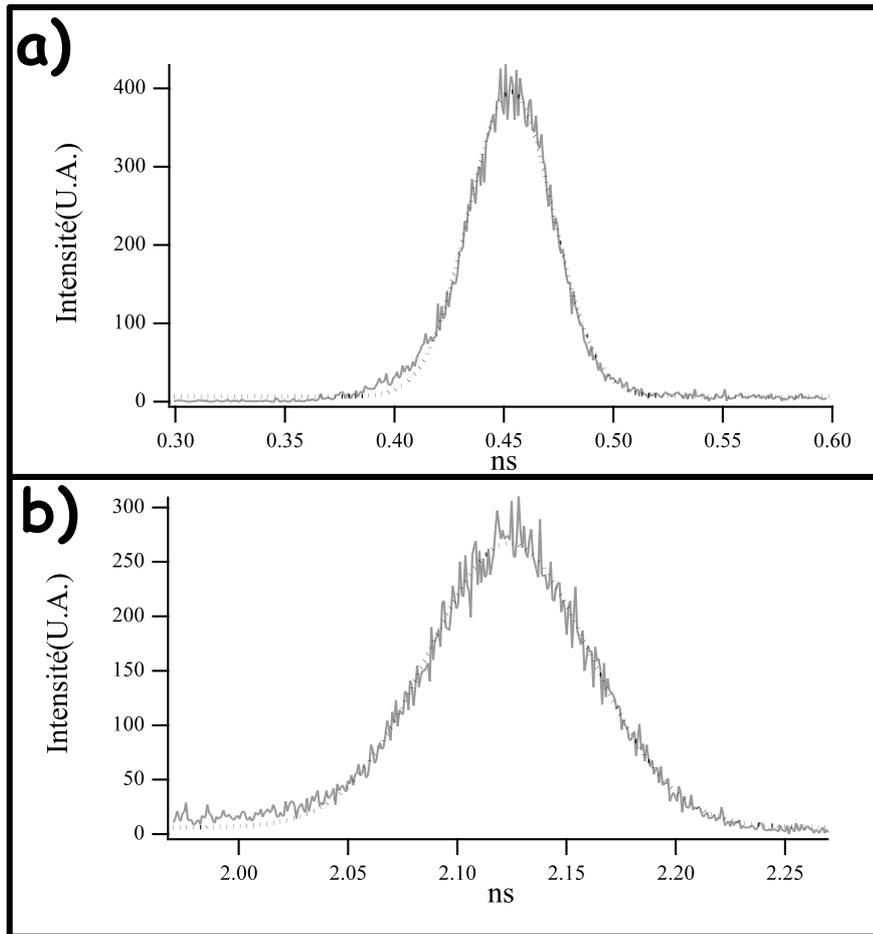


FIG. 4.14 – a) Résolution temporelle ou gigue temporelle du meilleur photomultiplicateur seul utilisé. Mesure effectuée "à nue" i.e. sans aucun autre élément dispersif temporellement. b) Résolution temporelle du montage avec 2 photomultiplicateurs à galettes de microcanaux+spectromètres.

de tel détecteurs, la gigue (ou *jitter* en anglais) temporelle n'est que de 40 ps. C'est cette valeur qui limite la résolution temporelle de notre montage, la résolution de la carte d'acquisition étant bien meilleure (voir la suite).

La Fig 4.14-a) montre la fonction d'autocorrélation d'une impulsion laser détectée par un PM en comptage de photons sur une voie et d'une photodiode standard qui sert d'horloge sur l'autre voie. Une forte intensité incidente du laser évite tout jitter sur ce détecteur. Au premier ordre, la gigue n'est donc donnée que par le PM lui même (les impulsions laser étant de 1.2 ps en moyenne). On peut observer une largeur à mi-hauteur de 45.3 ps dans ce cas, sans spectromètre. La Fig 4.14-b) montre cette fois-ci la même mesure mais avec 2 PMs en détection, l'un deux servant d'horloge cette fois-ci et chaque photomultiplicateur se trouve derrière à la sortie d'un spectromètre. Cette précision est importante car l'on rappelle qu'un spectromètre peut lui aussi étaler un paquet d'onde et donc contribuer à diminuer la résolution temporelle. Ce retard dû au spectromètre est un retard purement géométrique entre la partie du faisceau lumineux qui touche

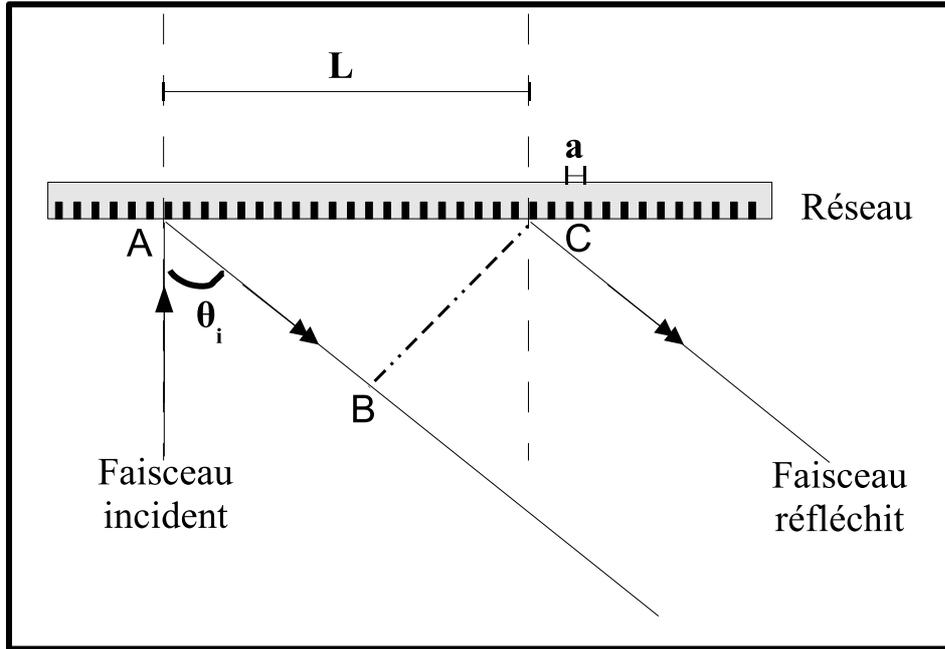


FIG. 4.15 – Représentation géométrique du retard temporel pris par un faisceau incident réfléchi par un réseau. La figure définit les paramètres pertinents pour le calcul de la différence de marche δ .

une extrémité du réseau et la partie du faisceau lumineux qui touche l'autre extrémité du réseau. La différence de marche δ est donnée par $\delta = |AB|$. La Fig 4.15 représente géométriquement ce qui se passe pour un faisceau incident réfléchi par le réseau avec les paramètres pertinents pour le calcul de δ . Temporellement on a le retard t_r donné par $t_r = \delta/c$. On peut montrer que la relation entre l'angle d'incidence θ_i et t_r est donnée par :

$$t_r = \frac{L \sin \theta_i}{c} \quad (4.9)$$

avec L la longueur du réseau éclairé et θ_i l'angle d'incidence du faisceau. Pour une longueur de réseau éclairé de $L = 3 \text{ cm}$. On peut avoir un retard maximum (i.e. pour $\theta_i = \pi/2$) de $t_r = 100 \text{ ps}$. Typiquement avec nos spectromètres, les angles sont relativement petits de l'ordre de 15° , d'où un retard de seulement 10 ps .

Pour les 2 courbes de la figure 4.14, un ajustement par une fonction gaussienne a été effectué (en traits pointillés). Une largeur à mi-hauteur de 88.1 ps a été trouvée pour le cas où il y a 2 spectromètres et 2 PMs. Cette gigue temporelle totale est suffisamment moins importante que le temps caractéristique des boîtes, typiquement 200 à 300 ps correspondant au temps de vie des excitons dans les îlots de CdSe et de CdTe (voir chapitre 3). En théorie, la largeur devrait être donnée par le produit de convolution des deux détecteurs. On observe qu'il n'en est pas ainsi puisque la dispersion des spectromètres ne suffit pas à expliquer un facteur de presque 2 entre les 2 configurations. Nous admettrons

notre résultat et le prendrons comme un fait expérimental. Nous devons préciser que cette résolution temporelle varie selon les expériences que l'on fait, c'est à dire selon les éléments dispersifs que l'on utilise pour faire une mesure mais on peut dire avec certitude que $\Delta t < 100 \text{ ps}$.

En plus de la résolution temporelle, il faut préciser aussi qu'un paramètre crucial pour les expériences avec raies de boîtes uniques est l'efficacité quantique du détecteur choisi. D'après les spécifications du constructeur, dans la gamme spectrale qui nous intéresse, l'efficacité peut varier de 0.1 à 0.5% à 600 nm jusqu'à atteindre presque 10% à 500 nm avec une valeur de quelques pourcents seulement à 550 nm. Ceci explique en partie pourquoi nous avons dû chercher les boîtes les plus énergétiques autour de 560 nm lorsque nous avons fait des mesures avec CdTe dans ZnTe.

De même que les coups "d'obscurité", c'est-à-dire les coups pour rien dûs essentiellement au bruit électronique, sont également à prendre en compte dans nos expériences. Avec une tension de polarisation typique de 3kV, en moyenne moins de 100 coups/s (100 Hz) sont enregistrés, ce qui est tout à fait acceptable au vu de nos coups "vrais" de quelques kHz (voir Chapitre 5). Enfin, notons que la surface active de tel détecteur représente toute la photocathode d'entrée donc une surface d'environ 3 cm². Ceci simplifie grandement le couplage d'un PM avec un monochromateur car il suffit seulement de laisser diverger la lumière de sortie et placer le photomultiplicateur à une position telle que toute la lumière recouvre la surface active. Il n'y a donc pas besoin d'optique de collection ou de refocalisation.

Photodiodes à avalanches

L'un des détecteurs à photons uniques le plus couramment utilisé est la photodiode silicium à avalanche (ou APD pour **Avalanche Photodiode** en anglais). Nos photodiodes sont des produits de Perkin-Elmer EG&G, modèle *SPCM AQR-14*. Comme précédemment le bruit d'obscurité est de l'ordre de 100 Hz pour ce modèle. L'un des grands avantages de tel détecteur est que leur efficacité quantique η_E peut atteindre jusqu'à 65% à 700 nm. Même si il y a une dépendance avec la longueur d'onde, elle est beaucoup moins importante que dans le cas des photomultiplicateurs et la gamme spectrale accessible est beaucoup plus large. A 550 nm, $\eta_E = 55\%$ au lieu des quelques pourcents des PMs soit un gain de 10 sur l'efficacité de détection des photons. Toutefois, ce gain sur la collection se retrouve perdu sur la résolution temporelle des APDs.

En effet, ces détecteurs connaissent une gigue temporelle beaucoup plus importante pouvant atteindre jusqu'à 400 à 700 ps. La Fig 4.16 montre à nouveau le signal d'autocorrélation d'une impulsion laser passant à travers les monochromateurs et arrivant sur les photodiodes à avalanche. La largeur à mi-hauteur est de 919.5 ps donc une dégradation d'un facteur 10 par rapport à la même mesure avec des PMs. Enfin, on notera que contrairement aux détecteurs décrits précédemment, les APDs possèdent une surface active de seulement $200 \times 200 \mu\text{m}^2$. Il a fallu donc, après la fente de sortie des spectromètres, monter une optique d'adaptation, constituée de deux lentilles. La première récupère la lumière et la rend parallèle alors que la deuxième focalise cette lumière parallèle sur la puce active

de la photodiode à avalanche. Un grandissement de un est suffisant. L'APD est elle-même montée sur platines de translation XYZ micrométrique pour pouvoir se positionner au point focal de la deuxième lentille. Cela complique un peu la procédure d'alignement sur cette photodiode mais une fois que ce réglage est fait, il est relativement facile de retrouver le bon réglage d'une journée sur l'autre.

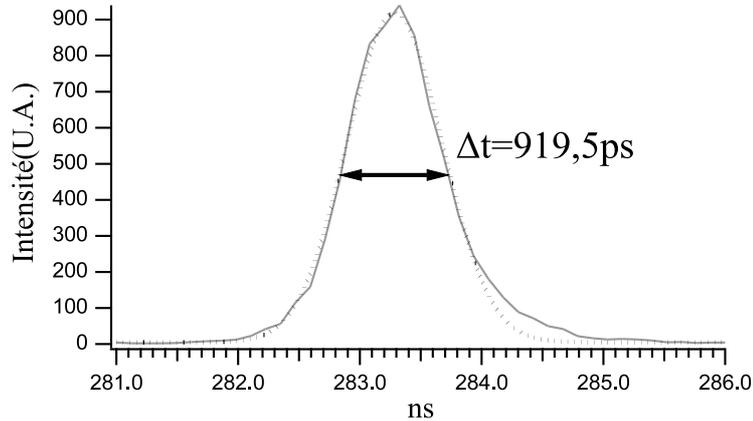


FIG. 4.16 – Résolution temporelle du montage avec 2 photodiodes à avalanches + spectromètres.

En résumé, ces deux types de compteurs de photons doivent être vus comme étant complémentaires. En effet, supposons que nous soyons à la saturation d'une boîte quantique en excitation continue. Celle-ci émettra un photon à peu près tout les $1/\tau$ où τ représente la durée de vie, soit $1/200 \text{ ps} = 5 \text{ GHz}$. Supposons que l'efficacité de collection de photons soit de l'unité même si nous verrons plus loin qu'il n'en est rien. On peut alors effectuer des mesures d'autocorrélation décrites au chapitre 2 et dans la partie suivante 4-5. La résolution des PMs nous permettra de voir des comportements temporels. A présent, si nous passons en régime impulsionnel, nous aurons, au plus, la création d'un exciton par impulsion, soit un taux d'émission de photons de 80 MHz . Cela évidemment car les impulsions sont beaucoup plus courtes que la durée de vie de notre système : $1 - 2 \text{ ps}$ contre $200 - 300 \text{ ps}$. Donc par rapport au régime continu, nous aurons à peu près 60 fois moins de photons détectés. Autrement dit, une expérience avec un temps d'acquisition T donnée pour les photomultiplicateurs en régime continu, mettra 60 fois plus de temps à être effectuée en régime impulsionnel et mettra 60^2 fois plus de temps pour une mesure de corrélations. C'est là que nous devons utiliser les photodiodes à avalanches qui, ayant une efficacité environ 30 à 40 fois plus grande, vont permettre de rattraper cette perte de photons due au mode d'excitation. Nous pouvons dès lors effectuer des mesures que nous ne pouvions pas obtenir avec les galettes à microcanaux. Toutefois, les APDs ne peuvent nous fournir aucune information temporelle.

Enfin, nous devons mentionner l'utilisation récente d'autres types de photodiodes à avalanche que nous avons très récemment installé sur notre montage. Ces APDs proviennent de IdQuantique, modèle *Id100-20* et ont la particularité de posséder les 2 points forts des PMs et des APDs standards. En effet, leur gigue temporelle n'est que de 40 ps

(tout comme les PMs) et leur efficacité peut atteindre 30 % à 500 nm. A performances temporelles égales, l'efficacité est 2 fois moins bonne que des APDs standards mais tout de même 3 à 4 fois meilleure que des photomultiplicateurs à galettes de micro-canaux. Ce compromis est donc très bon puisqu'à présent on peut avoir ces photodiodes tout le temps sur le montage et effectuer tout type de mesures citées auparavant, impulsions ou continues. Le seul inconvénient est que la surface active de cette APD est seulement de $20 \times 20 \mu\text{m}$ soit 100 fois plus petit que pour des photodiodes à avalanche standards. Optiquement, le montage en sortie des spectromètres vers les APDs est pratiquement le même que précédemment tout en étant beaucoup plus sensible en position. L'ajustement du chip au point focal de la lentille est beaucoup plus critique.

4.5 Montages TCSPC et Hanbury-Brown Twiss

4.5.1 Compteur de Photons Uniques à Corrélations Temporelles

Dans cette partie, nous allons décrire le principe du compteur de photons uniques à corrélation temporelle ou TCSPC pour **Time-Correlated Single Photon Counting** en anglais. Cette technique est employée lorsque l'on veut mesurer le temps de vie d'un émetteur. Les résultats de durée de vie sur une boîte quantique unique présentés au chapitre 3 ont été obtenus par cette méthode. Cette méthode est notamment très utilisée en biologie et en chimie pour étudier la dynamique de certains composants ou colorants.

Pour décrire cela, supposons que nous excitions une boîte quantique à l'aide d'un laser impulsif. Nous avons vu au chapitre 3 que lorsqu'un exciton est photocréé à un instant t , il va ensuite se désexciter selon une loi en exponentielle décroissante au premier ordre. On effectue alors une expérience dite de **Start-Stop** pour mesurer une telle loi. Cette mesure consiste à découper chaque impulsion laser en deux avec une partie qui va avoir pour but d'exciter l'échantillon et l'autre qui servira d'impulsion de référence pour la carte d'acquisition. Le signal de fluorescence est l'événement **Start** où l'on démarre un chronomètre en quelque sorte. L'événement **Stop** qui interrompra cette mesure, donc ce chronomètre, sera donné par un photon laser détecté après qu'une excitation laser a eu lieu.

On comprend bien que tout de suite après qu'une impulsion laser ait créé un exciton dans la BQ, la probabilité de détecter un photon, est d'autant plus faible que l'on attend longtemps après le **Start**. Ou autrement dit, la probabilité de détecter à $t + \tau$ un photon est d'autant plus grande que τ est petit. En fait, la probabilité de détection décroît de façon exponentielle. Toutefois, à cause de la détection des photons de façon individuelle qui se fait de manière discrète le signal de détection consiste en un histogramme de temps distribués selon une exponentielle décroissante.

A faible taux de comptage, ce qui est typiquement le cas, il y a beaucoup d'impulsions sans photons et quelquefois des impulsions qui possèdent un photon, et un seul, pour les raisons évoquées précédemment. En réalisant des mesures **Start-Stop** successives, on

va pouvoir reconstituer un histogramme temporel du temps d'arrivé des photons **Start** détectés pour un événement **Stop** associé (donné par le laser qui lui ne rate jamais dans le sens où il est tellement intense que chaque impulsion laser crée une impulsion électrique). Chaque paire de coïncidence **Start-Stop** va contribuer à remplir les cases de cet histogramme. A nouveau, la probabilité, donc le remplissage d'une case, sera d'autant plus grande que l'on regarde proche de l'impulsion **Start** donc du "0" temporel.

On comprend à présent que tout réside dans la précision à mesurer l'écart temporel entre une impulsion **Start** et une impulsion **Stop**. Pour cela, on utilise un Convertisseur Temps-Amplitude ou CTA, (TAC pour **Time-to-Amplitude Converter**). Le principe d'un CTA est de déclencher une rampe de tension au moment du **Start** puis ensuite, lorsqu'un photon produit une impulsion **Stop**, de stopper la rampe de tension. La valeur de la tension mesurée est alors proportionnelle au temps écoulé entre les deux détections.

Cette rampe de tension est lancée ou arrêtée par des impulsions électriques venues des APDs ou des PMs et après sélection par des discriminateurs. Ces discriminateurs ont pour but d'éliminer tout signal électrique parasite en-dessous d'une certaine valeur seuil que l'on peut fixer. En fait pour les PMs, nous utilisons des discriminateurs à fraction constante dont le principe d'opération est un peu plus compliqué. Un discriminateur à fraction constante (où CFD) détermine de façon différentielle le maximum de l'impulsion et conduit à une détermination du temps d'arrivée du photon insensible à la hauteur de l'impulsion électrique produite par le PM. Pour finir, les tensions mesurées sont ensuite "hachées" numériquement et numérisées à l'aide d'un analyseur multicanaux (ADC pour **Analog Digital Converter**). L'ADC va ensuite ordonner les événements dans les cases de l'histogramme temporel.

Toute la partie électronique qui consiste en deux discriminateurs (un sur la voie **Start** et un sur la voie **Stop**), le CTA et l'ADC sont compris dans une carte d'acquisition que l'on peut insérer dans un ordinateur. Le modèle de cette carte est *SPC-630* de Becker&Hickl. Des câbles coaxiaux relient simplement celle-ci aux sorties des détecteurs APDs ou PMs. Les spécifications de la carte sont données comme ayant une résolution temporelle électronique de 7 ps donc bien plus petite que les 200 ps de référence. L'histogramme possède 4096 canaux, ou cases, avec une plage temporelle maximale qui peut aller sonder entre 3.3 ns et $2\text{ }\mu\text{s}$. Les "pixels" temporels t_b (encore appelé **time bin** en anglais) sont respectivement de 0.815 ps à 488 ps respectivement. La résolution temporelle peut alors être estimée en effectuant une mesure de **START-STOP** d'une impulsion laser : la largeur d'une impulsion nous donne cette limite. Les figures de la section 4.4 ont été effectuées de cette façon et donnent les résolutions temporelles du montage.

4.5.2 Montage de Hanbury-Brown Twiss et Fonction de Corrélations

Au chapitre 2, nous avons déjà introduit la fonction de corrélations d'ordre 2 : $g^{(2)}(\zeta)$ et le principe du montage dit de Hanbury-Brown et Twiss. Nous allons relié dans cette section cette expérience au montage **Start-Stop** décrit précédemment.

Nous avons déjà évoqué l'intérêt scientifique d'une telle expérience et la motivation originale dans le chapitre 2. A présent, évoquons la nécessité expérimentale d'un tel montage. Nous ne l'avons pas évoqué jusqu'à présent, mais habituellement, les détecteurs sensibles au photon unique (tel que les photomultiplicateurs et photodiodes à avalanches déjà décrites) ont un temps mort entre 2 "comptages" qui est de 50 *ns* pour les APDs et de 300 *ps* pour les PMs. Cela veut dire que pendant ce temps mort, le détecteur est aveugle et ne voit pas ce qu'il se passe. Cela revient à dire que tous les effets temporels inférieurs à ce temps typique sont complètement masqués. Il serait alors impossible de voir un effet de dégroupement de photons qui a lieu seulement durant 1 à 2 *ns*. L'intérêt d'un montage HBT décrit au chapitre 2 est alors de regarder des temps relatifs entre 2 détecteurs avec de tel temps morts. Dans ce cas, seul la gigue temporelle va limiter. Comme nous l'avons vu précédemment, cette gigue peut être inférieure à 100 *ps*, ce qui est bien plus court que les temps morts des détecteurs. On notera que pour certaines molécules dont les durées d'émission d'une transition sont assez longues, i.e. $0.1 < t < 1ms$, un seul détecteur est suffisant puisque les temps caractéristiques sont bien plus grands que le temps mort du détecteur. En fait, cela est un bon moyen de faire de la spectroscopie de molécules uniques et la technique est appelée spectroscopie de corrélations. Le montage expérimental de Hanbury-Brown et Twiss sert donc à mesurer la fonction $g^{(2)}$. Cela revient simplement à modifier le principe de mesure en START-STOP décrit dans 4.5.1. A présent, le START est déclenché par un photon de fluorescence, comme auparavant, mais l'impulsion STOP elle est aussi déclenchée par un autre photon de fluorescence. Cette mesure donne accès aux temps relatifs entre photons et donne la statistique des photons émis.

4.6 Mesure de la Cohérence Optique

4.6.1 Interféromètre de Michelson

Nous avons vu au chapitre 2 la notion de cohérence optique et combien il était important pour nous de pouvoir quantifier, donc mesurer, cette cohérence optique. L'expérience y était décrite en guise d'illustration mais la technique habituelle pour mesurer une telle grandeur est d'utiliser un interféromètre de Mach-Zender ou de Michelson [8].

Après avoir commencé par monté un Mach-Zender, nous avons très vite opté pour le Michelson. Pour des raisons expérimentales, l'interféromètre de Michelson est beaucoup plus stable mécaniquement et nous pouvons avoir des contrastes d'intensité sur les interférences bien meilleurs dans ce cas. La Fig 4.17-a) présente le schéma de principe d'un tel interféromètre. L'interféromètre possède une entrée e_1 et 2 sorties s_1 et s_2 . Un des bras est monté sur une longue vis (30 *cm* correspondant à un temps de cohérence maximum mesurable de $2 \times 1 ns$, le 2 provenant du fait que l'on fait un aller-retour) à pas fin pour une grande excursion (grand retard t_L) et l'autre sur un piézoélectrique pour une faible excursion (sublongueurs d'ondes, retard t_l) et pour voir les franges d'interférences. La 4.17-b) présente un cliché photographique de l'interféromètre sur notre montage.

On précisera enfin que cet interféromètre peut être esquivé à volonté selon les besoins de l'expérience. Un miroir amovible avant le Michelson permet d'effectuer cette esquive.

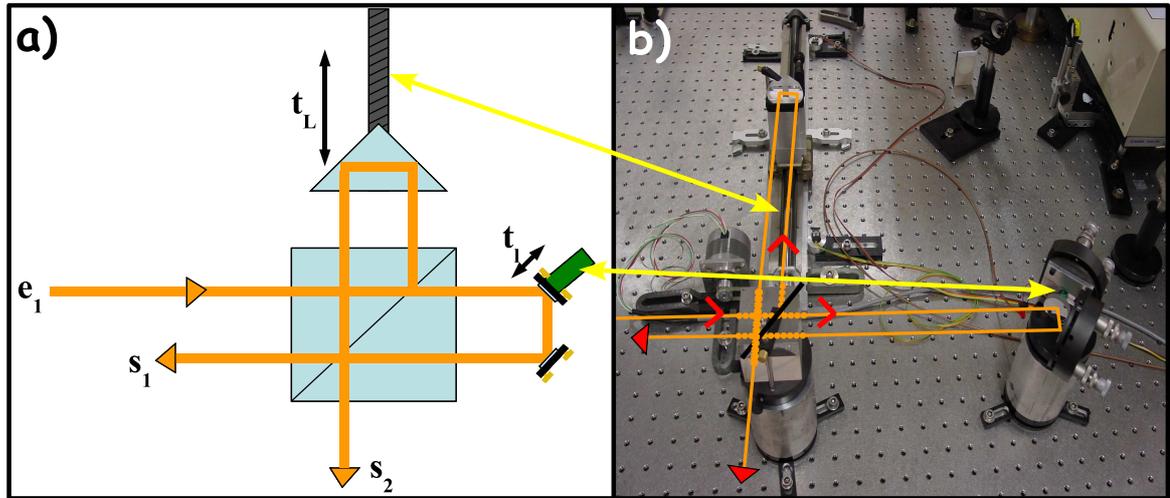


FIG. 4.17 – a) Représentation d'un interféromètre de Michelson avec une entrée e_1 et 2 sorties s_1 et s_2 . Un bras est monté sur une vis à pas fins pour une grande excursion (grand retard t_L) et l'autre sur un piézoélectrique pour une faible excursion (petit retard t_l) et pour voir les franges d'interférences. b) Cliché photographique de l'interféromètre sur le montage.

4.6.2 Performances Obtenues

Abordons à présent les performances obtenues avec le montage de la figure 4.17. L'idée étant de mesurer la longueur de cohérence d'une raie d'émission excitonique d'une seule boîte quantique, cela ne peut se faire qu'avec des détecteurs suffisamment sensibles, comme ceux déjà décrits plus haut. Pour cela, il a fallu s'assurer que l'on pouvait observer des photons laser (dont l'intensité était fortement atténuée) passant par l'interféromètre de Michelson, puis par un spectromètre (indispensable en vrais conditions expérimentales) et enfin sur le détecteur. Ensuite, il faut s'assurer que l'on peut observer et compter des franges d'interférences avec le PM ou l'APD. La procédure est donc de se placer au préalable au délai nul avec un bras puis de balayer avec l'élément piézoélectrique de l'autre bras. Des franges sont alors visible, représentant le contraste à t_L donné (ici $t_L = 0$ au départ) lorsque l'on enregistre le nombre de photons sur le détecteur en fonction de la distance parcourue par le second bras (retard fin t_l). La Fig 4.18-b) montre ce type de mesure enregistrée avec le laser impulsionnel doublé donc vers 515 nm comme en véritable conditions expérimentales. On peut observer les franges d'interférences clairement en fonction du retard t_l d'un bras. On observe aussi que l'élément piézoélectrique subit tout d'abord une instabilité électrique avant de se mettre à fonctionner correctement. La ligne en traits pleins représentant les coups d'obscurité du système, donc de la lumière parasite.

La Fig 4.18-a) montre la courbe de contraste finale obtenue dans de telles conditions. Chaque point de cette courbe de visibilité représente une valeur de contraste mesurée (cf. la Fig 4.18-b) pour un t_L donné. Une courbe de franges possède en moyenne 30 points à raison de 2 à 5 s d'acquisition, cela représente un temps d'acquisition total de 60 à 150 s. Ensuite, une courbe de visibilité possède à son tour 50 points d'où un temps total d'acqui-

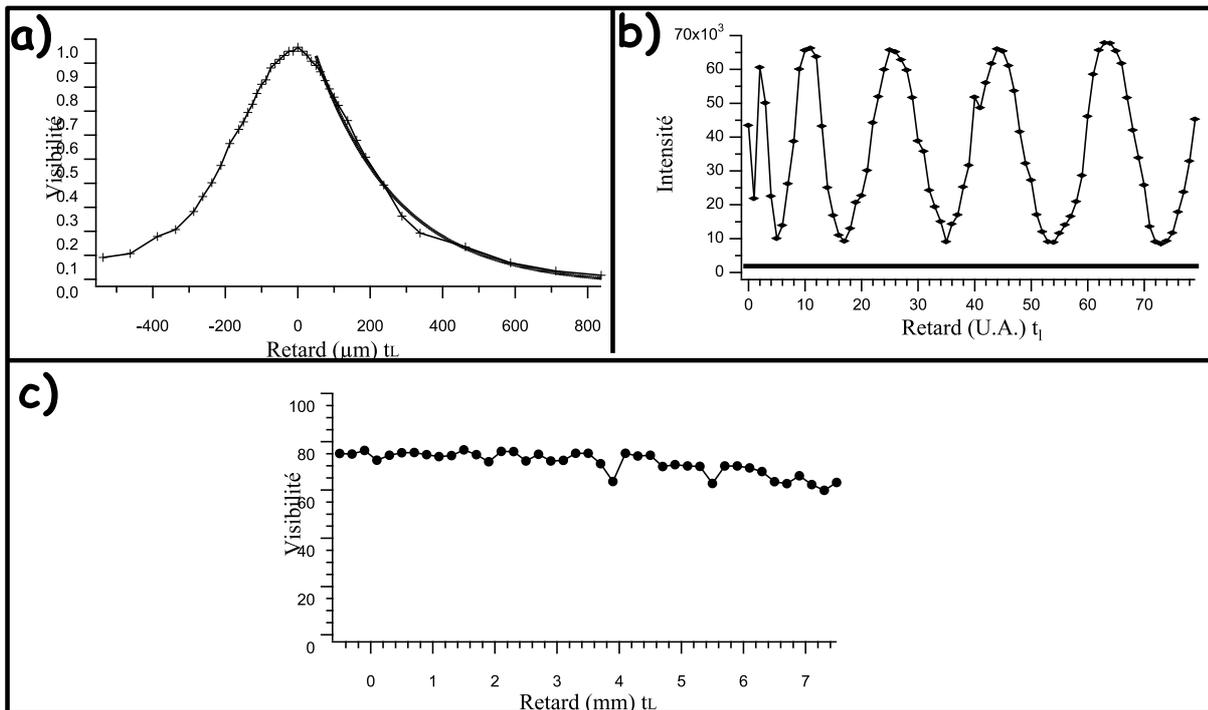


FIG. 4.18 – a) Contraste du laser doublé en fréquence avec une longueur de cohérence trouvée de $452 \mu\text{m}$. b) Plusieurs franges d'interférences du laser enregistrées en comptage de photons à la sortie du spectromètre. c) Etude de la stabilité mécanique du montage sur plusieurs millimètres. Mesures faites avec un laser argon de très grande longueur de cohérence (de l'ordre du mètre).

sition pour obtenir une courbe de visibilité de 300 à 750 s . Un ajustement expérimental donne une valeur de 452 μm (i.e. 1.5 ps correspondant bien au signal d'autocorrélation) soit une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 0.27 nm$ ce qui correspond à la valeur attendue de 0.25 nm trouvée par mesure spectrale directe (voir partie 4.2.3). On notera qu'une telle mesure doit se faire sur 1h voire 2h et que l'interféromètre était stable mécaniquement durant tout ce temps. Il faut enfin préciser que les fentes de sortie des spectromètres ne doivent pas être trop fermées sous risque d'élargir artificiellement les raies observées. Pour cela, les fentes sont suffisamment ouvertes, de l'ordre de quelques fois la largeur à mi-hauteur d'une raie excitonique.

En plus de la stabilité sur le temps, la stabilité sur la distance de retard était également suffisante. La 4.18-c) montre la chute de visibilité du laser argon continu lorsque l'on bouge le bras de la longue vis. Sur 7 mm , la chute de visibilité n'est que de 10% sans retoucher quoi que se soit sur l'interféromètre, i.e. aucun miroir d'alignement. Bien sur, cela veut dire que sur toute la vis (30 cm) il faut certainement intervenir mais dans un premier temps, une stabilité sur quelques millimètres est suffisante.

4.7 Miscellanés

4.7.1 Filtrage Supplémentaire

Nous verrons dans les chapitres 6 et 7 que pour certaines expériences nous avons dû exciter très près des raies d'émissions des boîtes quantiques, typiquement à 2–3 nm d'une raie. Il faut donc pour cela bien filtrer le laser. Avant tout, estimons le taux de réjection dont nous avons besoin.

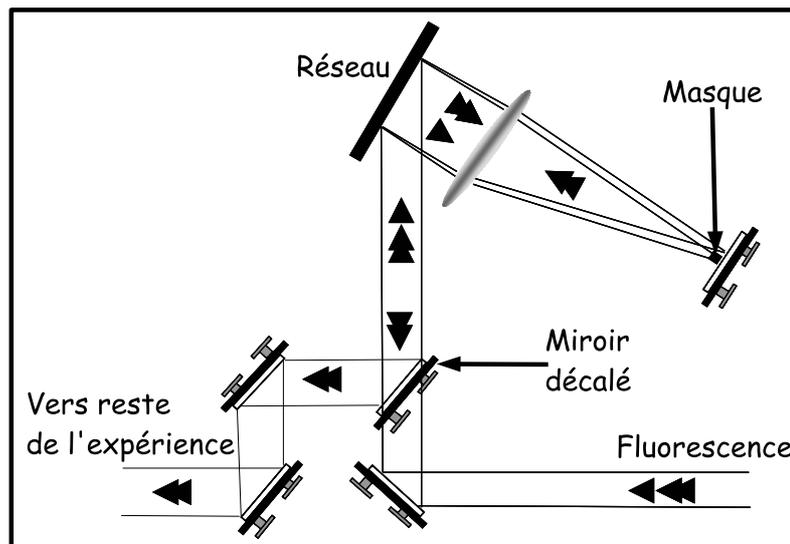


FIG. 4.19 – Montage de filtrage supplémentaire avec réseau et masque pour stopper la lumière laser non-désirée.

Supposons que l'on veuille exciter une boîte quantique avec un laser de puissance 0.1 mW qui est l'ordre de grandeur. Cela aura pour effet d'observer environ 10.000 cps sur une caméra CCD ou sur un détecteur de photons uniques (taux de comptages typiques). La puissance d'émission est reliée au nombre de photons par $P = E/t = n\hbar\omega/t$. Donc pour un nombre de photons $n = 10.000 \text{ cps}$ donnés (et avec une énergie de disons 2 eV) on aura la puissance équivalente de $P \sim 3 \text{ fW}$. Le rapport entre puissance laser et puissance de fluorescence est alors de 3.10^{10} . C'est ce que nous devons atténuer par filtrage pour pouvoir avoir le signal de l'ordre du laser.

Sachant qu'un spectromètre rejette d'un facteur 10^4 à 2 nm de la raie (mesuré expérimentalement), qu'un cube séparateur de polarisation peut lui atténuer de 10^3 (également mesuré), il manque encore un facteur 1000. Nous avons donc dû rajouter sur le montage un réseau supplémentaire pour pouvoir rejeter le laser. La figure 4.19 montre un tel montage. Le principe est comme un spectromètre de diffracter la lumière incidente de 2 longueurs d'ondes différentes (représentées par 1 et 2 triangles) à l'aide du réseau. Ensuite à l'aide d'une lentille de grande focale, on focalise cette lumière diffractée sur un miroir qui va renvoyer toute la lumière dans le système par le même chemin optique. Au point focal au niveau du miroir, en choisissant bien la lentille, on aura 2 tâches focales séparées de 1 mm par nm . En prenant un masque de taille de largeur 1 mm , on pourra donc couper une longueur d'onde (celle à un triangle noir sur le dessin de la figure 4.19) et laisser passer l'autre. Ce montage est équivalent à un spectromètre double en mode additif, c'est à dire que les retards géométriques s'additionnent. Toutefois, nous avons vu dans la partie 4.4.2 que ce retard pouvait être plus ou moins important. Dans cette configuration, l'angle était suffisamment grand pour ne pas engendrer de dispersion temporelle notable.

4.7.2 Transmission et Taux de Collection

Dans une expérience de comptage de photons, il nous est apparu essentiel de se soucier de la collection des photons et de la transmission des différents éléments utilisés. Supposons que nous partions qu'une efficacité de détection η de 100%. Dans le cas d'une boîte quantique à saturation, cela représente $1/200 \text{ ps}$ soit 5 GHz . A présent, nous devons pondérer cette efficacité par tous les éléments optiques traversés, chacun ayant une transmission ou une détection plus ou moins efficace d'après ce que l'on a vu tout au long de ce chapitre. On a donc :

$$\eta = \eta_{MO} \times \eta_{HBT} \times \eta_{spectro} \times \eta_{CCD} \times \eta_{filtre} \times (\eta_{lentille})^3 (\eta_{miroir})^{10} \approx 8.10^{-5} \quad (4.10)$$

avec $\eta_{MO} = 5 \%$ la transmission et collection de l'objectif microscope, $\eta_{HBT} = 50 \%$ dû à la perte de 50% du montage Hanbury-Brown Twiss, $\eta_{spectro} = 30 \%$ la transmission du spectromètre Chromex, $\eta_{CCD} = 2 \%$ l'efficacité de détection de la caméra CCD, $\eta_{filtre} = 80 \%$ dû à un filtre placé sur le chemin pour couper le laser, $\eta_{lentille} = 95 \%$ la transmission de lentilles (3 lentilles en tout) et $\eta_{miroir} = 98 \%$ la transmission de miroirs nécessaires à transporter le faisceau lumineux (10 miroirs en tout). Avec de telles valeurs, on trouve donc $\eta \approx 8.10^{-5}$. D'où un nombre de coups par seconde attendu sur le

spectre de la CCD de $8.10^{-5} \times 5 \text{ GHz} = 40 \text{ kHz}$. Ce chiffre est à rapprocher des 10 kHz précédemment cité. L'accord est relativement correct à la vue des chiffres. C'est de plus ce qui est habituellement rapporté par d'autres groupes avec des montages similaires. Le désaccord provient du fait qu'il est par exemple difficile d'être précis sur η_{CCD} en autre.

4.7.3 Survol du Montage Final

Pour finir ce chapitre, la Fig 4.20 montre deux photos de tout le schéma expérimental final comme il était disposé sur la table d'expérience. Sur la photographie du haut (Fig 4.20-a)) on peut y voir le cryostat à hélium (celui présenté ici est le cryostat à doigt froid) ainsi que le microscope de focalisation et le cube séparateur de polarisation entre le laser et la fluorescence. On peut également reconnaître l'interféromètre de Michelson, le rajout pour le réseau supplémentaire, les 2 spectromètres pour les expériences de corrélations avec les 2 caméras CCD et les 2 détecteurs à la sortie de chaque spectromètre. La photographie du bas (Fig 4.20-b)) représente ce qui est en amont du cryostat, i.e. les systèmes lasers avec le laser impulsif Titane-Saphir, et le cristal doubleur, ainsi que le laser argon ionisé.

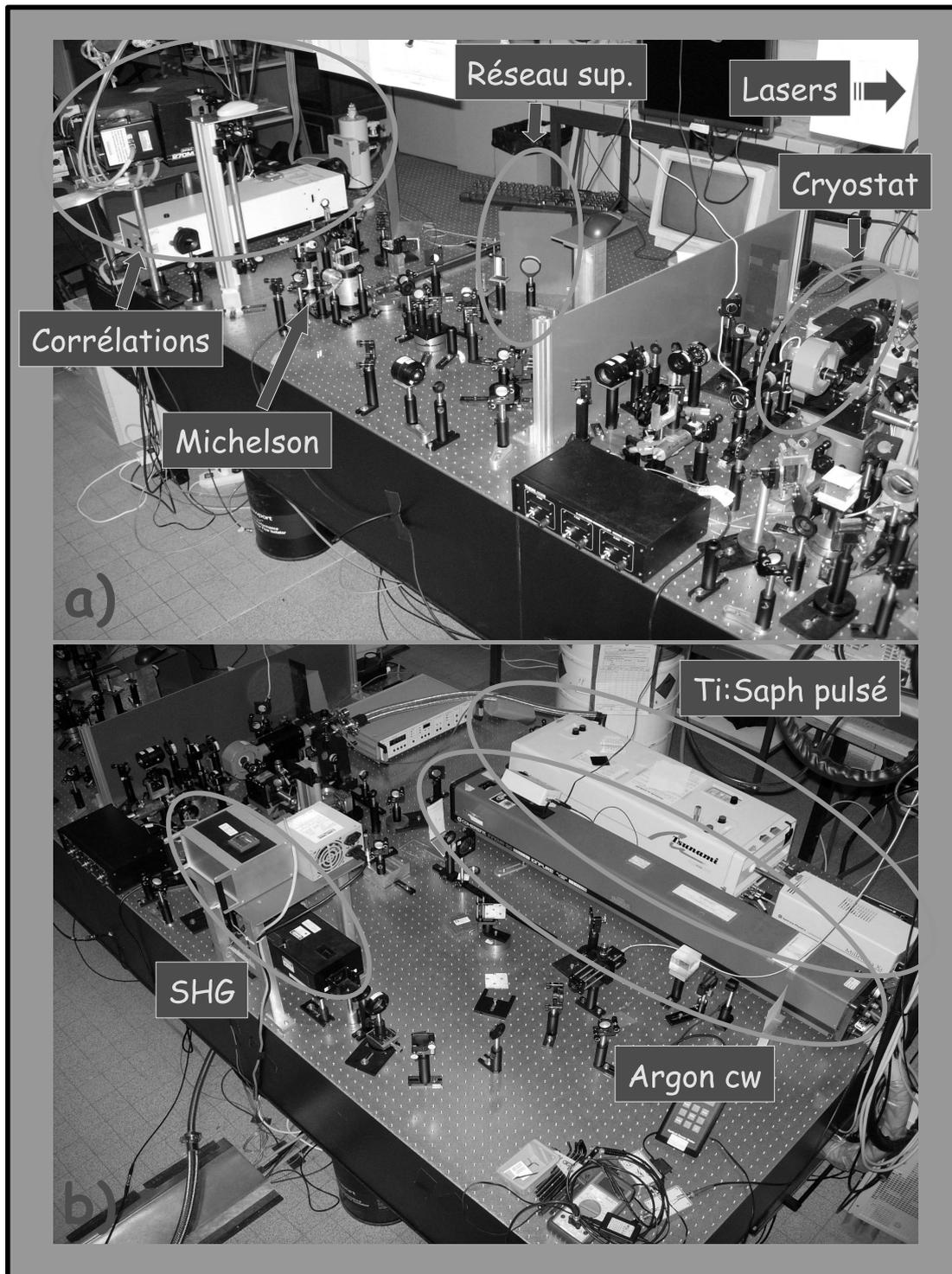


FIG. 4.20 – Photographie du montage final avec en a) la partie laser et en b) le reste de l'expérience.

Bibliographie

- [1] *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*.
V.G. Dmitriev, G.G. Gurzadyan, et D.N. Nikogosyan, Ed. Springer, **3ième éd** (1999).
- [2] *II-VI quantum dot formation induced by surface energy change of a strained layer*.
F. Tinjod, B. Gilles, S. Moehl, K. Kheng, et H. Mariette, Appl. Phys. Lett. **82**, 4340 (2003).
- [3] *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in InGaAs/GaAs self-assembled quantum dots*.
M. Bayer, et A. Forchel, Phys. Rev. B **65**, 41308 (2002).
- [4] *Etude des propriétés optiques de boîtes quantiques semiconductrices II-VI pour leur application à l'émission à un photon à haute température*.
S. Moehl, Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier (2005).
- [5] *Imaging spectroscopy of two-dimensional excitons in a narrow GaAs/AlGaAs quantum well*.
Q. Wu, R.D. Grober, D. Gammon, et D.S. Katzer, Phys. Rev. Lett. **83**, 2652 (1999).
- [6] *Excitons, biexcitons, and electron-hole plasma in a narrow GaAs/AlGaAs quantum well*.
Q. Wu, R.D. Grober, D. Gammon, et D.S. Katzer, Phys. Rev. B **62**, 13022 (2000).
- [7] *Solid immersion lens-enhanced nano-photoluminescence principle and applications*.
S. Moehl, Hui Zhao, B. Dal Don, S. Wachter, et H. Kalt, J. Appl. Phys. **93**, 6265 (2003).
- [8] *Principles of Optics*.
M. Born, et E. Wolf, Ed. Pergamon Press, **6ième éd** (1980).

Chapitre 5

Autocorrélation de Photons Uniques et Corrélations Croisées de Paires de Photons

Sommaire

5.1	Modélisation des Corrélations Temporelles	120
5.1.1	Equivalence : Population d'un Niveau-Statistique de Photons	120
5.1.2	Modèle d'un Système à Deux Niveaux	122
5.1.3	Modèle de Transitions Multiexcitoniques	124
5.1.4	Application aux Corrélations Croisées	128
5.2	Confrontation avec les Résultats	130
5.2.1	Courbes de Saturation et de Déclin des Niveaux	130
5.2.2	Taux de Comptage et Prise en Compte du Bruit	133
5.2.3	Autocorrélation de la Transition Excitonique	135
5.2.4	Corrélations Croisées Exciton-Biexciton	138
5.3	Amélioration des Modèles	141
5.3.1	Présence de l'Exciton Noir	141
5.3.2	Piégeages Profonds	144
5.4	Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre	146

Epitomé

Nous allons aborder dans ce chapitre les premiers résultats expérimentaux indispensables pour s'assurer que les boîtes quantiques semiconductrices que nous possédons sont bien des sources à photons uniques, ou des sources à paires de photons. Nous commencerons par montrer le lien entre la mesure de la fonction d'autocorrélation introduite au chapitre 2 et l'étude de l'évolution de populations d'excitons et de biexcitons dans une boîte unique. Nous établirons tout d'abord la modélisation d'un seul exciton puis de plusieurs excitons dans une BQ. Nous confronterons ce modèle aux résultats expérimentaux en soulignant les accords et les divergences. Des résultats d'autocorrélation et de corrélations croisées en régime continu et en régime impulsionnel seront présentés. Nous présenterons des résultats sur des boîtes quantiques de CdTe et de CdSe. Pour terminer nous décrirons des expériences complémentaires qui ont été faites ou qui devraient être faites pour mieux comprendre les zones d'ombres toujours présentes sur la physique des boîtes quantiques. On tentera notamment de voir si la présence d'excitons noirs ou des piègeages par des dopants pourraient répondre à nos interrogations.

5.1 Modélisation des Corrélations Temporelles

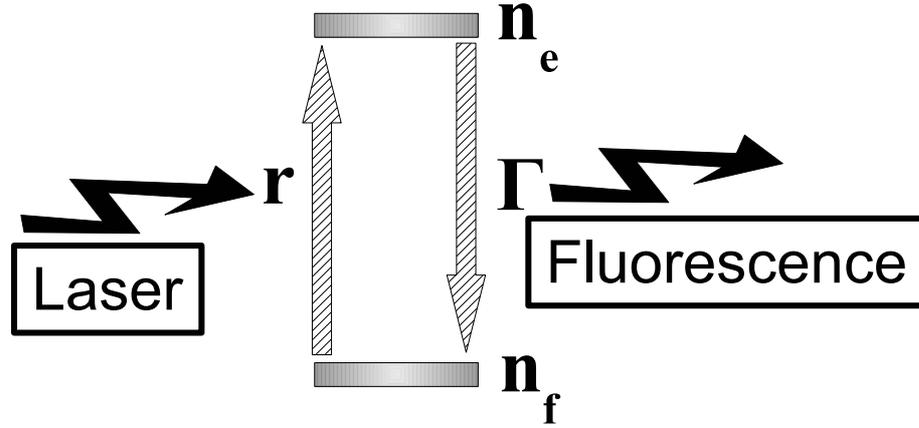
5.1.1 Equivalence : Population d'un Niveau-Statistique de Photons

Nous avons introduit au chapitre 2 le formalisme de l'optique quantique nécessaire à la compréhension des mesures de statistique de photons. Toutefois, il n'est pas encore complètement clair comment l'on peut relier la probabilité d'occupation d'un niveau à la statistique des photons enregistrés sur un détecteur (ou deux!) à comptage de photons. La question est donc de relier la mesure de $g^{(2)}$ théorique à la vraie mesure effectuée de START/STOP comme vu dans la partie 4.5. Sachant que la fonction d'autocorrélation d'ordre deux $g^{(2)}(t, t + \zeta)$ correspond à la corrélation entre deux événements de détection qui ont lieu en t et $t + \zeta$ et sachant que la détection d'un photon correspond à l'application de l'opérateur de destruction de photons comme vu dans le chapitre 2. Nous pouvons alors écrire la probabilité par unité de temps de détecter un photon au temps t puis au temps $t + \zeta$ comme étant proportionnelle à la destruction d'un photon en t puis en $t + \zeta$ et l'on a :

$$\begin{aligned} \wp(t, t + \zeta) &\propto |E^{(+)}(t + \zeta)E^{(+)}(t)|i\rangle|^2 \\ &\propto \langle i|E^{(-)}(t)E^{(-)}(t + \zeta)E^{(+)}(t + \zeta)E^{(+)}(t)|i\rangle \end{aligned} \quad (5.1)$$

On peut identifier l'équation précédente à l'équation (2.34) de la fonction d'autocorrélation et avoir :

$$g^{(2)}(\zeta) = \frac{\wp(t, t + \zeta)}{\wp(t, t)} \quad (5.2)$$


 FIG. 5.1 – Schéma d'un système à 2 niveaux avec un niveau fondamental f et un niveau excité e .

On peut alors introduire la probabilité conditionnelle $\wp(t + \zeta|t)$ de détecter un photon à l'instant $t + \zeta$ sachant que l'on a détecté un photon à l'instant t . Le dénominateur traduit la probabilité d'avoir un photon à t lorsque l'on a déjà eu un photon à t , et $\wp(t, t) = \wp(t)^2$ avec $\wp(t)$ la probabilité d'émettre un photon par seconde. D'où la petite transformation de (5.2) :

$$\begin{aligned}
 g^{(2)}(\zeta) &= \frac{\wp(t, t + \zeta)}{\wp(t, t)} \\
 &= \frac{\wp(t + \zeta|t) \cdot \wp(t)}{\wp(t)^2} \\
 &= \frac{\wp(t + \zeta|t)}{\wp(t)} \tag{5.3}
 \end{aligned}$$

Considérons à présent un système à deux niveaux quantiques, le fondamental f et l'excité e avec n_f et n_e représentant les populations respectives de ces 2 niveaux. On notera que le système est excité de façon continue par un laser. La Fig 5.1 représente schématiquement ce système. Dès lors, la détection d'un photon à l'instant t va projeter le système dans son état fondamental. Ainsi, la probabilité de détecter un deuxième photon à l'instant ζ est gouvernée par l'évolution de la population de l'état excité $\wp(t + \zeta|t) = \wp(\zeta|0) = n_e(\zeta)$.

On a choisi ici $t = 0$ comme étant l'instant de première détection et le système est donc dans son état fondamental à $t = 0$ d'où $n_e(0) = 0$ et $n_f(0) = 1$. De plus la probabilité $\wp(t)$ de détecter un événement à t est toujours la même et ne varie pas dans le temps. Cette probabilité correspond donc à une population stationnaire de l'état excité $\wp(t) = n_e(\infty)$. On a alors pour la fonction $g^{(2)}(\zeta)$:

$$g^{(2)}(\zeta) = \frac{\wp(t + \zeta|t)}{\wp(t)}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{\wp(\zeta|0)}{\wp(\infty)} \\
 &= \frac{n_e(\zeta)}{n_e(\infty)}
 \end{aligned} \tag{5.4}$$

Tout dépend dès lors de la population des niveaux mis en jeux et comment chaque population évoluera en fonction du temps. C'est ce que nous devons déterminer à l'aide des équations d'évolution des populations d'excitons, de biexcitons, de triexcitons...

5.1.2 Modèle d'un Système à Deux Niveaux

Le premier cas d'école est le cas simple déjà cité dans la partie précédente, celui d'un système à 2 niveaux. Considérons pour cela que le système possède seulement un niveau fondamental f , de population $n_f(t)$, et un niveau excité e , de population $n_e(t)$. La Fig 5.1 représente le diagramme d'énergie de ce système. Pour la population du niveau excité, celle-ci a une probabilité par unité de temps $\Gamma = 1/T_1$ (où T_1 est la durée de vie de la transition comme vu dans la partie 2.3 du chapitre 2) de se désexciter vers e et une probabilité r d'absorber un photon depuis l'état fondamental f c'est à dire le vide. Cette probabilité représente le taux de pompage du niveau par le laser. Les équations d'évolutions des 2 populations sont alors donnée par :

$$\begin{aligned}
 \frac{dn_e}{dt} &= r.n_f - \Gamma.n_e \\
 \frac{dn_f}{dt} &= -r.n_f + \Gamma.n_e
 \end{aligned} \tag{5.5}$$

avec la condition de fermeture du système $n_e(t) + n_f(t) = 1$ traduisant l'absence d'interactions avec l'extérieur. La résolution du problème se fait facilement et l'on arrive au résultat suivant pour la population n_e , lorsque la condition initiale est $n_e(0) = 0$:

$$n_e(t) = \frac{r}{r + \Gamma}(1 - e^{-(r+\Gamma)t}) = n_\infty(1 - e^{-(r+\Gamma)t}) \tag{5.6}$$

avec en régime stationnaire $n_e(t) = n_\infty = r/(r+\Gamma)$. La Fig 5.2-a) représente l'évolution de $n_\infty(r)$ en fonction du taux de pompage du laser r en régime stationnaire. A partir d'une certaine puissance, la population va saturer et la probabilité que le niveau soit occupé sera toujours de 1.

Il y a différentes façons de définir le régime de saturation d'une transition. Nous choisirons de définir notre excitation de saturation r_{sat} lorsque $n_\infty(r) = 1/2$. Cette situation se produit lorsque $r_{sat} = \Gamma$. On notera qu' expérimentalement, nous observons la présence de biexcitons dans la boîte quantique et ce modèle ne peut raisonnablement pas bien décrire notre système. Toutefois, à très faible excitation on pourrait s'attendre à ce que cela reste tout de même à peu près correct. A présent, d'après l'équation 5.2, on peut en déduire la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}$ qui sera de la forme :

$$g^{(2)}(\zeta) = 1 - e^{-(r+\Gamma)|\zeta|} \tag{5.7}$$

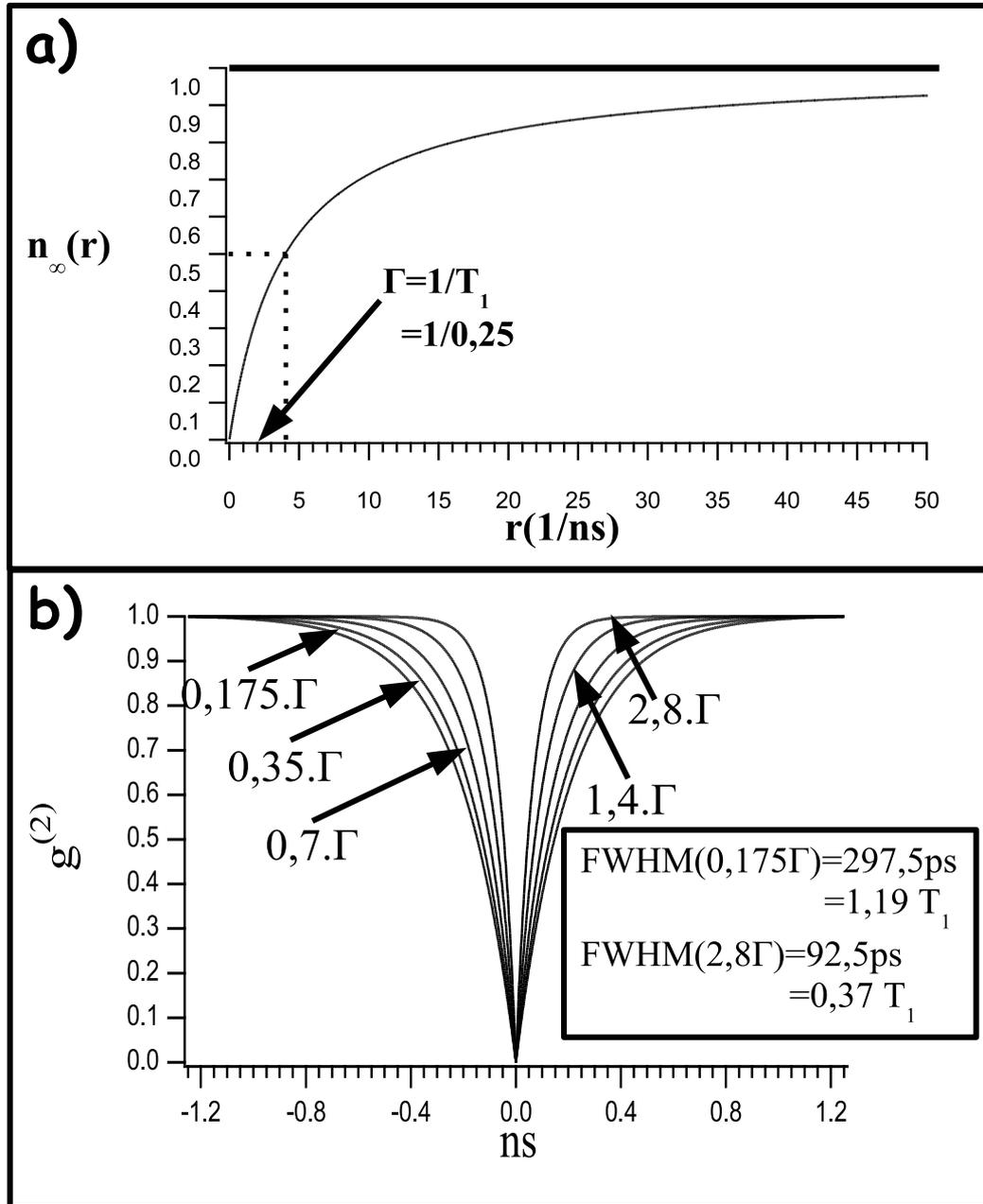


FIG. 5.2 – a) Evolution de la population stationnaire du niveau excité en fonction de la puissance du laser incident r . Une durée de vie de $T_1 = 1/\Gamma = 250 \text{ ps}$. b) Valeurs théoriques de la fonction $g^{(2)}(\zeta)$ pour 5 valeurs de r différentes, données en unité de Γ .

La valeur absolue est due au fait que la fonction est symétrique par rapport à 0. Les temps négatifs se produisant pour le cas où l'impulsion STOP arrive avant l'impulsion START.

La Fig 5.2-b) montre l'allure de la fonction d'autocorrélation pour plusieurs valeurs de pompage laser r . Ces valeurs sont données en unités de Γ et en unité de T_1 . Introduisons à présent la largeur à mi-hauteur $\Delta_{1/2}$ de la fonction $g^{(2)}$, on peut montrer que ce paramètre est dépendant de r et de Γ : $\Delta_{1/2} = 2 \ln 2 / (r + \Gamma)$. Il apparaît que la largeur à mi-hauteur diminue avec le pompage laser ce qui apparaît distinctement sur la Fig 5.2-b). Une valeur de $\Gamma = 250 \text{ ps}$ a été prise pour le temps de vie de, par exemple, un exciton dans une boîte quantique II-VI (pas complètement au hasard évidemment, voir le temps de vie mesuré d'une boîte CdTe dans la section 3.4.2). On notera que l'on peut recouper une mesure directe de T_1 avec une mesure de $g^{(2)}$ puisqu'à la limite où $r \rightarrow 0$, $\Delta_{1/2} = 2 \ln 2 / \Gamma = 347 \text{ ps}$.

Dans le cas qui nous intéresse, nous avons vu précédemment que selon la puissance d'excitation du laser, on peut créer un exciton ou plusieurs excitons dans une boîte quantique. Pour une situation où le laser d'excitation n'est pas trop important donc pour une situation où la création de biexciton (et plus) est négligeable, alors le formalisme précédent devrait être applicable. Toutes les expériences d'autocorrélation dans des boîtes quantiques réalisées par d'autres groupes ont été passé en revue au chapitre 2, partie 2.2.6.

5.1.3 Modèle de Transitions Multiexcitoniques

Considérons à présent la situation où justement la puissance du laser d'excitation induit plusieurs porteurs dans la boîte. Gershoni et collaborateurs ont été les premiers à considérer en détails un modèle multiexcitonique à plusieurs excitons créés dans une boîte unique. Modèle que l'on dénommera aussi un modèle en échelle [1, 2, 3]. La Figure 5.3 présente un schéma de ce modèle. Chaque niveau de population n_i est caractérisé par le temps de relaxation ou le temps de vie $T_1^i = \tau_i = 1/\Gamma_i$. La population du vide, c'est à dire lorsque la boîte est vide d'excitons, est elle donnée par n_0 . La probabilité de passage de la population n_i à n_{i+1} est toujours la même et donnée par r , représentant l'excitation laser continue.

Pour N excitons créés, nous aurons $N + 1$ équations qui seront de la forme suivante :

$$\frac{dn_i}{dt} = r.n_{i-1} - (r + \Gamma_i).n_i + \Gamma_{i+1}.n_{i+1} \quad (5.8)$$

On remarque que pour $i = 1$ en supposant que n_2 est négligeable donc que la population de biexcitons est très faible et sans le terme de pompage du niveau $X \rightarrow X_2$ on retrouve le système d'équations (5.5) pour un système à 2 niveaux. Au vu des équations (5.8), il apparaît clairement que l'évolution en fonction du temps de la population n_1 (donc de la population excitonique) n'est alors plus aussi simple que dans la partie précédente. Il faut tenir compte de toute la cascade radiative précédant la désexcitation de l'exciton final dans la boîte donc de la population n_1 . Toutefois, en excitation continue, la boîte va atteindre un régime stationnaire où $dn_i/dt = 0$, $\forall i$. La population du niveau i aura la forme :

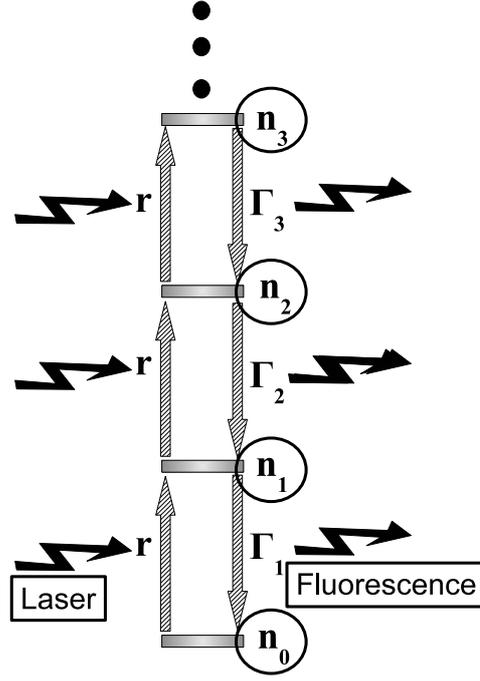


FIG. 5.3 – Schéma d'un modèle en échelle de transitions multiexcitoniques.

$$n_i^\infty = n_0 \cdot r^i \prod_{j=1}^i \frac{1}{\Gamma_j} \quad (5.9)$$

avec n_0 donnée par :

$$n_0 = \frac{1}{1 + \tau_1 r + \tau_1 \tau_2 r^2 + \dots + r^N \prod_{j=1}^N \tau_j} \quad (5.10)$$

Comme nous l'avons déjà signalé, il est évident qu'une BQ ayant un volume fini, elle ne pourra pas contenir une infinité d'excitons. Dès lors vient le choix de savoir où s'arrêter dans ce modèle, i.e. de savoir combien d'excitons au plus la boîte peut contenir. Supposons pour l'instant que la boîte ne contienne pas plus que 4 excitons. On justifiera ce choix dans la partie 5.2 de ce chapitre. Dans ce cas, les évolutions des populations stationnaires de l'exciton et du biexciton dans la boîte seront données par :

$$n_1^\infty(r) = \frac{r \cdot \tau_1}{1 + \tau_1 \cdot r + \tau_1 \tau_2 \cdot r^2 + \tau_1 \tau_2 \tau_3 \cdot r^3 + \tau_1 \tau_2 \tau_3 \tau_4 \cdot r^4} \quad (5.11)$$

$$n_2^\infty(r) = \frac{r^2 \cdot \tau_1 \tau_2}{1 + \tau_1 \cdot r + \tau_1 \tau_2 \cdot r^2 + \tau_1 \tau_2 \tau_3 \cdot r^3 + \tau_1 \tau_2 \tau_3 \tau_4 \cdot r^4} \quad (5.12)$$

Pour un tel modèle la Fig 5.4-a) représente l'évolution des populations stationnaires excitoniques n_{1-X} et biexcitoniques n_{2-X_2} en fonction de la puissance d'excitation r . Sur ces courbes, un maximum des populations des niveaux X et X_2 apparaît lorsque r

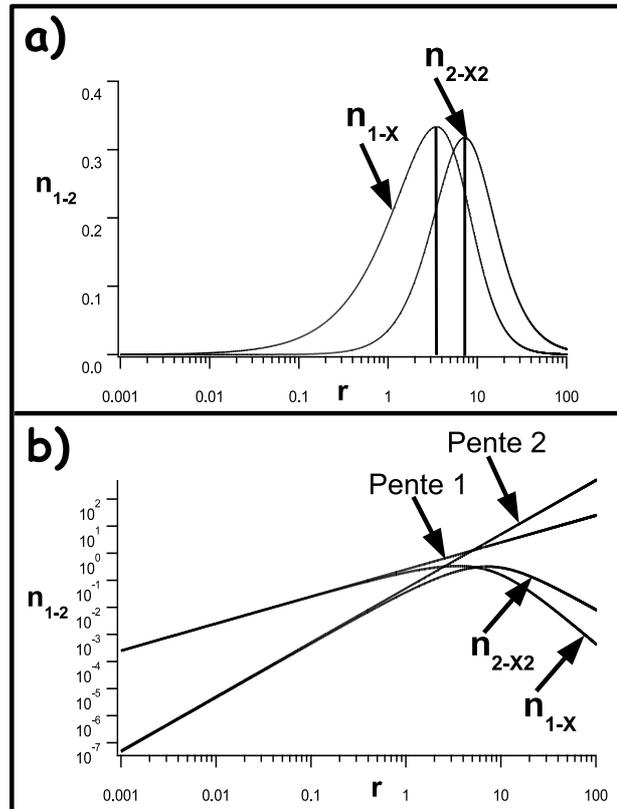


FIG. 5.4 – a) Evolution des populations excitoniques n_{1-x} et biexcitoniques n_{2-x_2} en fonction de la puissance d'excitation r . b) Idem que a) en échelle log-log et avec une courbe de pente linéaire et une courbe de pente quadratique.

augmente. Le maximum de saturation de X_2 étant pour une puissance d'excitation r plus grande que celui de X , ce qui est attendu. Avant de peupler et saturer le biexciton, il faut commencer par peupler complètement et saturer l'exciton dans la boîte. La probabilité de trouver un exciton seul dans la boîte diminue en fonction de la puissance au contraire du biexciton qui lui sera plus présent avec la puissance. De même, lorsque la puissance d'excitation r augmente encore, le niveau n_2 du biexciton se vide au profit du niveau n_3 du triexciton et ainsi de suite.

La figure 5.4-b) représente les mêmes courbes en échelle log-log plus 2 courbes, l'une de pente linéaire et l'autre de pente quadratique. On voit bien sur cette représentation que l'évolution du niveau excitonique est linéaire avec la puissance d'excitation alors que l'évolution du niveau biexcitonique est elle quadratique avec la puissance. On notera que r est en nombre de Γ et que pour ces courbes nous avons pris $\Gamma_1 = 1/250 \text{ ps}$ et $\Gamma_2 = 1/185 \text{ ps}$ d'après les mesures directes de temps de vie présentées dans le chapitre 3. Dans le chapitre 3, il était déjà question des différentes façons de différencier des excitons de biexcitons. En plus de l'écart énergétique et de la polarisation, l'évolution en fonction de la puissance d'excitation est une bonne manière de savoir.

A présent, intéressons nous à la forme de la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}$ pour la lumière émise lorsqu'il n'y a plus qu'un exciton dans la boîte (transition de $1 \rightarrow 0$)

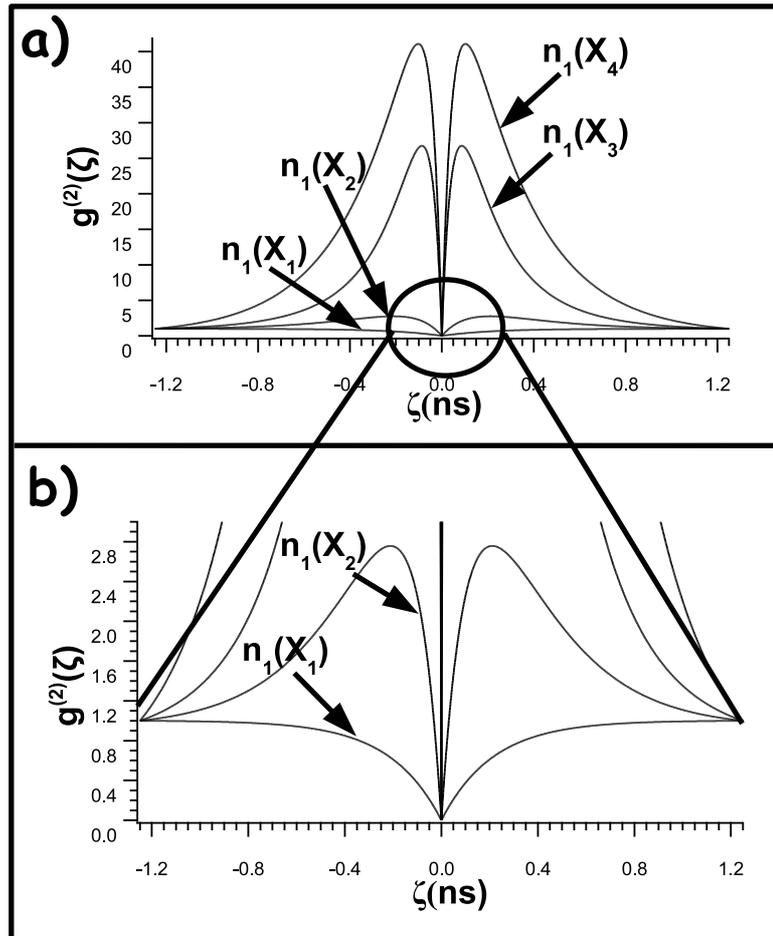


FIG. 5.5 – a) Allure de la fonction d'autocorrélation $g^{(2)}(\zeta)$ pour la population excitonique n_1 d'une boîte quantique. Les 4 courbes représentent cette même fonction pour différents degrés de remplissage d'excitons dans la boîte : X_1 , X_2 , X_3 et X_4 . b) Idem que a) avec un gros plan au voisinage de $\zeta = 0$ dans le cas où seulement un et deux excitons sont considérés dans la boîte. Dans les 2 cas, on a pris $r = 0.175 \Gamma$. Les valeurs de Γ_1 et Γ_2 de la figure 5.4 ont été repris et Γ_3 et Γ_4 sont issus de [5].

donnée plus haut dans le cadre d'un modèle multiexcitonique. La Fig 5.5-a) présente l'allure de cette courbe en fonction du nombre de niveaux pris en compte. La Fig 5.5-b) est simplement un gros plan au voisinage de 0 pour le cas où seulement 1 et 2 excitons sont considérés. Dans les 2 cas, on a pris $r = 0.175 \Gamma$. A la vue des courbes, on peut reconnaître la forme de la fonction dans le cas où l'on ne considère qu'un seul exciton dans la boîte pour $n_1(X_1)$. $n_1(X_2)$, $n_1(X_3)$ et $n_1(X_4)$ représentent respectivement la fonction d'autocorrélation lorsque l'on arrête à 2, 3 et 4 excitons dans la boîte. Pour avoir les idées claires, on notera que n_1 considère la population du dernier exciton présent dans la boîte et cela en fonction de son "passé" selon qu'il y ait eu auparavant 2, 3 ou N excitons dans la boîte. Il est tout de suite frappant de voir que la fonction d'autocorrélation possède clairement 3 paliers. Les premiers cas sont assez différents l'un de l'autre entre 1 et 2 excitons dans la boîte. Pour le cas où X_2 est pris en compte la fonction $g^{(2)}$ possède des lobes légèrement plus grands que 1 pour $1 > |r/\zeta| > 0$. Pour 3 et plus d'excitons, cet effet de groupement de photons au voisinage de 0 (mais pas en 0 lui-même car pour un dipôle unique le dégroupement est toujours présent pour $\zeta \rightarrow 0$) s'accroît encore à tel point que l'on peut atteindre des valeurs de 40 pour $g^{(2)}$. Toutefois, on observe aussi que même avec seulement 2 excitons pris en compte, la largeur à mi-hauteur (proportionnelle à $2 \ln 2 / (r + \Gamma)$ pour 2 niveaux, voir partie 5.1.2) tend à se rétrécir grandement. Ce point sera abordé plus loin et s'avérera important.

On notera que Regelman et al. [4] ont observé le passage de dégroupement de photons à groupement de photons dans une boîte unique de InGaAs. En augmentant la puissance du laser, ils observent que peu à peu le "trou" d'antibunching se bouche et devient une "bosse". En fait, leur résolution temporelle n'était pas assez bonne pour tout de même observer l'effet de dégroupement à retard nul comme sur la Fig 5.5-a). Ils ne voient donc qu'un effet de groupement aux fortes excitations traduisant bien le fait que la boîte possède de plus en plus d'excitons.

5.1.4 Application aux Corrélations Croisées

Nous avons vu dans la partie précédente que nous pouvons observer la fonction d'autocorrélation d'une transition d'un système entre 2 niveaux (X vers le vide) avec ou sans l'influence de niveaux supérieurs. Toutefois, dans le cas où il y a au moins 2 excitons dans la BQ, il est intéressant également de regarder les corrélations croisées entre l'exciton et son biexciton associé. Pour cela, il suffit d'avoir 2 spectromètres dont l'un sélectionne spectralement X et l'autre X_2 . A présent le START sera réalisé par X_2 et le STOP sera réalisé par X . Comme l'électronique nous permet de voir les temps négatifs (i.e. si le STOP est déclenché avant le START) nous allons avoir accès, comme pour l'autocorrélation, aux temps négatifs et positifs.

A présent, évaluons l'allure de la fonction $g^{(2)}$ dans ce cas particulier. En d'autres termes, nous cherchons la corrélation d'intensité entre l'exciton et le biexciton. La fonction de corrélation croisée $g_{12}^{(2)}$ a pour expression :

$$g_{12}^{(2)}(\zeta) = \frac{\langle I_1(t + \zeta) I_2(t) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle} \quad (5.13)$$

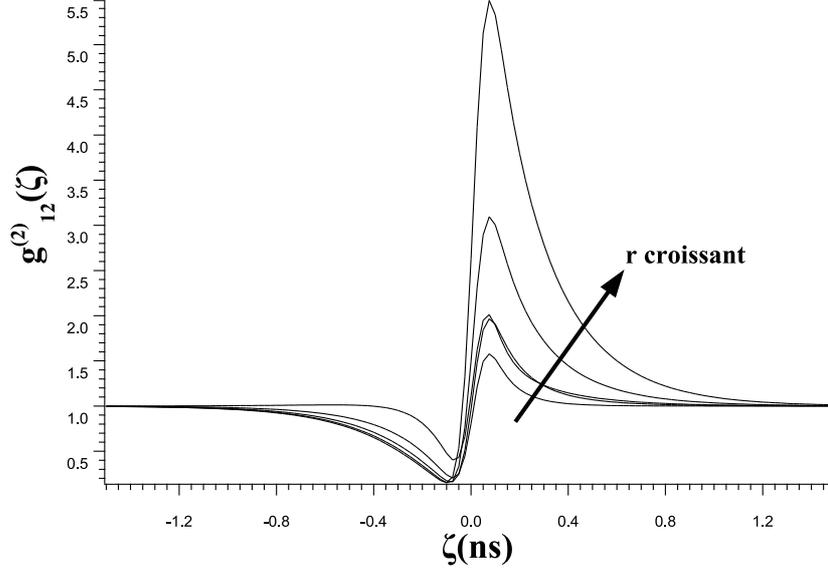


FIG. 5.6 – Allure de la fonction de corrélations croisées $g_{12}^{(2)}(\zeta)$ pour les populations excitonique et biexcitonique d’une boîte quantique pour 5 puissances d’excitation laser r différentes.

les indices 1 et 2 représentant le premier exciton (X) et le deuxième exciton (X_2 le biexciton) dans la boîte. Le calcul analytique pour 3 niveaux de la fonction de corrélation croisée peut s’avérer plus ardu que celui de la fonction d’autocorrélation. Toutefois, on peut montrer [6] qu’en régime de basse excitation, $g_{12}^{(2)}(\zeta)$ s’exprime de façon simple et permet de rendre compte qualitativement des comportements observés notamment par Moreau et al. [7] et Regelman et al. [4]. Les expressions sont les suivantes :

$$g_{12}^{(2)}(\zeta) = 1 + \frac{1}{\tau_1 - \tau_2} (\tau_2 e^{-\zeta/\tau_2} - \tau_1 e^{-\zeta/\tau_1}) \quad (5.14)$$

pour $\zeta < 0$ et

$$g_{12}^{(2)}(\zeta) = 1 + \frac{1}{r\tau_1} e^{-\zeta/\tau_1} \quad (5.15)$$

pour $\zeta > 0$. On notera que ces expressions (5.14) et (5.15) sont des expressions approchées et qu’elles ne décrivent pas correctement le raccordement en 0 ($g^{(2)}(0^-) = 0$ et $g^{(2)}(0^+) = 1 + 1/(r\tau_1)$). Cela est dû au fait que ces expressions sont des approximations.

La Fig 5.6 donne l’allure théorique de la fonction de corrélation croisée $g_{12}^{(2)}(\zeta)$ pour les populations excitonique et biexcitonique d’une boîte quantique pour 5 puissances d’excitation laser différentes. Qualitativement, aux temps légèrement positifs, cela correspond au cas où la cascade biexciton-exciton est enregistrée dans le bon ordre, i.e. X_2 en signal START puis X en STOP. Puisque l’on a une cascade, la probabilité d’observer un événement STOP due à l’exciton lorsque l’on a observé un START du biexciton est élevée

puisque l'on est sûr d'avoir les 2 émissions successives. On observe un groupement très prononcé de photons dans ce cas. On comprend aussi pourquoi l'exponentielle décroissante est fonction seulement du temps de vie de X , car lorsque l'on déclenche sur X_2 on attend pour X donc on regarde l'évolution temporelle de X , c'est à dire sa durée de vie.

Pour les temps légèrement négatifs, la situation est différente. Comme on a déclenché le STOP par un photon provenant de la recombinaison de l'exciton, on attend alors à présent la recombinaison d'un photon provenant d'un biexciton. Or, entre cet exciton que l'on a observé et le biexciton, il n'y a pas d'effet de cascade X puis X_2 . En effet, avant de pouvoir émettre le biexciton, la BQ a du se remplir de X tout d'abord puis de X_2 . Le phénomène d'émission en cascade n'a plus lieu dans ce cas. Tout se passe comme si nous regardions un phénomène de dégroupement de photons aux temps légèrement négatifs. On notera que les équations (5.14) et (5.15) montrent qu'à présent, les temps caractéristiques des exponentielles mises en jeu dépendent des durées de vies de X et de X_2 pas seulement de X .

5.2 Confrontation avec les Résultats

5.2.1 Courbes de Saturation et de Déclin des Niveaux

Photoluminescence en Fonction de la Puissance d'Excitation

Nous avons vu dans la partie précédente que l'évolution des populations excitoniques et biexcitoniques en fonction de la puissance d'excitation laser était un paramètre important pour savoir où l'on se place par rapport à la saturation de la transition et pour savoir quel est le modèle le mieux approprié à utiliser. La figure 5.7 montre l'évolution du spectre de boîtes quantiques délimitées par un trou de 200 nm de côté avec dans ce cas, seulement quelques boîtes excitées. Alors qu'à basse excitation, seule une raie apparaît sur le spectre, à plus forte excitation plusieurs autres raies se distinguent et dominent notamment le biexciton associé.

La Fig 5.8-a) et b) représentent la même évolution mais cette fois-ci quantitative d'un X et de son X_2 associé. La Fig 5.8-a) présente un ajustement des données par une droite de pente 1.2 pour X et de 1.7 pour X_2 . En échelle logarithmique, nous avons vu dans la partie 5.1.3 qu'en théorie les évolutions sont de pente 1 et 2. Il n'est pas rare de voir des divergences sur ces valeurs comme dans notre cas présent. L'une des raisons de ces différences est l'imperfection de la mesure car il n'est pas toujours facile d'atténuer de façon linéaire et logarithmique précisément lorsque l'on utilise pour atténuer des filtres neutres ou encore des polariseurs croisés (cette méthode étant meilleure mais toujours pas parfaite car un montage optique fait de miroirs, lentilles,... dépolarise toujours la lumière).

Une autre raison pourrait venir de la dynamique entre les excitons et les charges libres créées par le laser d'excitation. Block et al. [8] ont montré pour un puits quantique qu'il y avait un équilibre thermique qui s'établissait entre la phase excitonique et la phase charges libres et que cela pouvait induire des non-linéarités de la dépendance en puissance. On notera aussi que cela peut être dû à la présence d'excitons noirs mais nous n'avons eu le temps d'envisager un tel cas pour les évolutions des populations. Nous reviendrons sur ce point dans la partie 5.3.

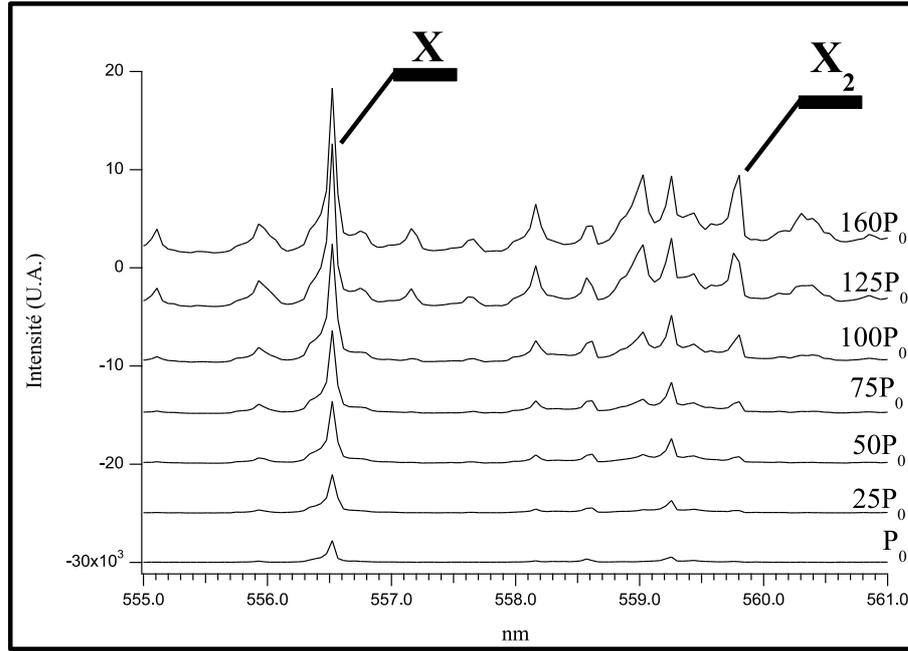


FIG. 5.7 – Evolution du spectre d'un trou de 200 nm de côté en fonction de la puissance d'excitation laser. Identification d'un exciton et de son biexciton associé.

Il apparaît sur la Fig 5.8-b) que l'exciton sature avant le biexciton et que lorsque ce dernier sature, la population de X elle décroît. Dans les 2 cas, les ajustements ont été pris avec les fonctions données par les expressions (5.11) et (5.12) avec les temps de vie appropriés et mesurés de X , X_2 et déduits de mesures de puissance de X_3 et X_4 [5]. L'accord expérimental avec le modèle est très bon dans ce cas. Le seul paramètre ajustable est alors la puissance d'excitation r .

Courbes de Déclin de l'Exciton et de son Biexciton associé

Lorsque l'on confronte les résultats expérimentaux, comme ceux des mesures de saturation, à la théorie, il faut essayer d'éliminer au maximum les paramètres ajustables. Dans notre situation les paramètres à connaître sont les temps de vie des différents niveaux. Pour l'exciton et le biexciton, nous avons effectué des mesures de temps de vie directement sur ces populations déjà présentées au chapitre 3 section 3.4.2. Les temps de vie mesurés sont de :

$$T_{X_1} = 251 \pm 5 \text{ ps} \quad (5.16)$$

$$T_{X_2} = 185 \pm 4 \text{ ps} \quad (5.17)$$

On notera également la présence de temps longs sur chaque recombinaison :

$$T'_{X_1} = 6.22 \pm 0.68 \text{ ns} \quad (5.18)$$

$$T'_{X_2} = 3.22 \pm 0.52 \text{ ns} \quad (5.19)$$

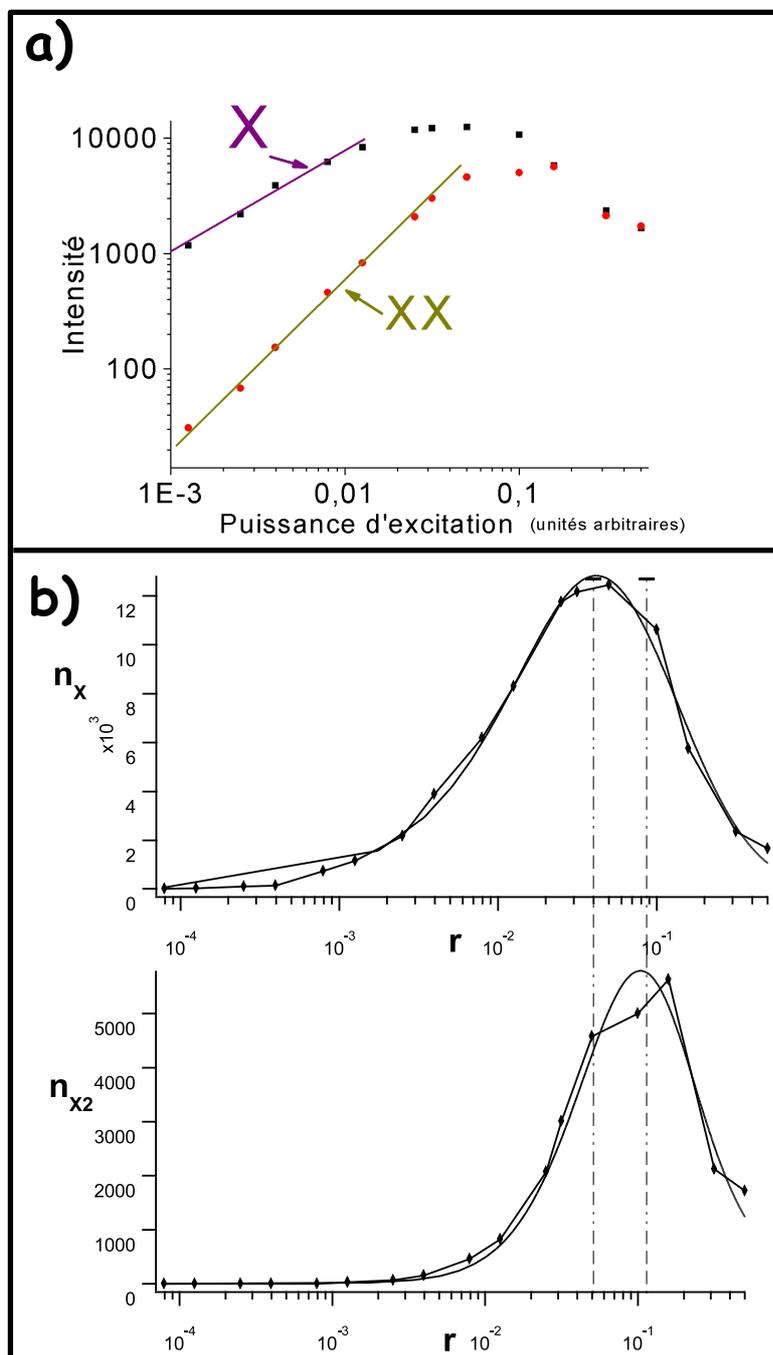


FIG. 5.8 – a) Dépendance en fonction de la puissance des populations excitonique et biexcitonique en échelle semi-logarithmique. b) Idem que a) en échelle log-log avec apparition d'un maximum de fluorescence dans les 2 cas.

Nous reviendrons sur ce point particulier dans la partie 5.3. On rappelle que $T_{X_2} \neq T_{X_1}/2$ ce que nous avons déjà évoqué dans la partie 3.4.2.

Pour les temps de vie du triexciton (X_3) et du quadriexciton (X_4), nous avons repris les valeurs déjà trouvées par Besombes et al. [5] à l'aide des courbes d'évolution en fonction de la puissance. Contrairement à notre cas, ils ont pu voir apparaître des complexes triexcitoniques et quadriexcitoniques dans certaines de leurs boîtes. En utilisant les formules (5.8), ils ont pu dès lors remonter aux temps de vie T_3 et T_4 . Signalons qu'en principe, comme X_3 et X_4 sont placés dans la couche p de la boîte, il y a 2 recombinaisons possibles pour de tels complexes, soit une transition $s - s$ soit une transition $p - s$. D'où 2 temps caractéristiques T_i^s et T_i^p avec $i > 2$. Pour simplifier, nous avons pris un temps moyen $(T_i^s + T_i^p)/2$.

5.2.2 Taux de Comptage et Prise en Compte du Bruit

Evaluation des Événements Coïncidents

Avant de montrer nos résultats obtenus sur boîtes quantiques uniques II-VI, il est bon de rappeler quelques formules élémentaires de statistique de comptage.

En effet, travaillant dans le régime de comptage de photons, les expériences d'auto-corrélation peuvent s'avérer longues et laborieuses. Il faut donc avoir une idée, avant de lancer une expérience de ce type, de la durée d'acquisition totale dont on aura besoin. La limite de ce temps est en pratique une journée complète d'expérience donc 8 à 10 heures. Après 10 heures, la bouteille d'hélium commence à se vider et l'attention de l'expérimentateur aussi. Nous pouvons donc nous baser sur un temps total d'acquisition $T < 10h$. A présent, ce qui nous intéresse de savoir également, c'est le nombre moyen d'événements coïncidents (d'événements START/STOP) par canal temporel (ou pixel temporel) que l'on veut à la fin de notre expérience. Comme nous l'avons vu au chapitre 2, la fonction $g^{(2)}$ dans le cas d'un laser suit une loi poissonnienne et est constante et égale à 1. Cette valeur 1 est normalisée à la statistique que l'on étudie. En pratique, une carte comme celle décrite au chapitre 4, donne un nombre d'événements coïncidents N_c par canal. Pour des événements de coïncidence indépendants le bruit caractéristique sur N_c est de $\sqrt{N_c}$. On se fixe un seuil au-dessus du bruit et l'on exige que $N_c > 5\sqrt{N_c}$, d'où $N_c > 25$. On peut alors montrer que le nombre total d'événements coïncidents dans le cas d'événements indépendants (comme c'est le cas pour une source poissonnienne, voir chapitre 2) est donné par :

$$N_c = n_1 \cdot n_2 \cdot T \cdot t_b \quad (5.20)$$

où n_1 , n_2 représentent les taux de comptage par seconde sur le détecteur i . T est le temps d'acquisition total et t_b est la durée du pixel temporel (Time Bin en anglais). Cette formule traduit en fait la probabilité, pour un taux de comptage moyen n_1 , de détecter un événement venant de n_2 dans une fenêtre temporelle donnée t_b .

Dans la formule (5.20), la dernière valeur à estimer est le pixel temporel dont nous avons besoin. Deux cas de figure se présentent selon que l'on est en mode continu ou

en mode impulsif. En régime impulsif, pour une fréquence de laser d'excitation de $f = 80 \text{ MHz}$, la fenêtre temporelle est précisément $t_b = 1/f$. En effet, puisque les impulsions laser durent environ $1 - 2 \text{ ps}$ et que le temps de vie de l'exciton est de l'ordre $200 - 300 \text{ ps}$, il n'y aura pas de réexcitation de la boîte dans une même impulsion. On aura donc au plus un photon par impulsion. En d'autres termes, pour une mesure de coïncidences, à un START donné, le STOP ne peut venir que de l'impulsion suivante au plus tôt. Ceci nous donne la valeur de $t_b = 1/f$.

Pour ce qui est du régime continu, la limitation entre deux signaux START/STOP successifs n'est donnée que par la fenêtre temporelle que l'on choisit puisqu'à présent les excitons sont créés continûment. Toutefois, puisque l'exciton possède un temps de recombinaison fixe, on ne pourra créer d'excitons plus vite que le temps qu'il faut pour qu'ils se désexcitent. Le temps de vie T_1 de l'exciton est donc la valeur limitante, temps qui est relié à la saturation du niveau puisque le maximum de photons émis par seconde par cette transition ne peut pas dépasser $1/T_1$. Dans le cas des boîtes II-VI on a vu que $T_1 \sim 200 - 300 \text{ ps}$. A nouveau, pour avoir un bon compromis entre ce que l'on veut voir et le bruit, il faut prévoir que $t_b < T_1/10$, donc $t_b \approx 20 \text{ ps}$. Pour résumer, dans la formule (5.20), t_b en régime impulsif est donné par le taux de répétition du laser et en régime continu, t_b est fixé par l'utilisateur en fonction des temps caractéristiques à observer.

Supposons que l'on veuille effectuer une mesure d'autocorrélation en régime impulsif, ayant en tête toutes ces valeurs, on peut estimer le temps T d'acquisition total pour une expérience. Supposons pour cela que $n_1 \approx n_2 \approx n$ et comme on l'a vu au chapitre 4, les taux de comptage n_i sur chaque détecteur ne dépassent pas en général 100.000 cps (*cps* pour Coups Par Seconde). C'est à dire 0.1 MHz donc presque 1000 fois moins que f . En d'autres termes, une impulsion sur 1000 est vide de photons. Dès lors on a :

$$T = \frac{N_c}{n_1.n_2.t_b} = \frac{n_c}{n^2.t_b} = 0.5s \quad (5.21)$$

On notera que le temps d'acquisition varie avec le carré des taux de comptage. Dans la plupart de nos expériences décrites plus loin, nous étions autour de $n_i \approx 10.000 \text{ cps}$ donc un facteur 100 en plus sur T . Un tel facteur ramène à presque 1 min la durée de l'expérience. Un gain ou une perte sur les taux de comptage de chaque détecteur a une influence quadratique sur T .

En continu, pour des mêmes taux de comptage similaires et avec cette fois-ci un pixel temporel de $t_b = 20 \text{ ps}$ (pour les raisons énoncées plus haut), on trouvera que le temps d'acquisition est de :

$$T = \frac{50}{100000^2 \cdot 10 \cdot 10^{12}} = 250s = 4 \text{ min } 10s \quad (5.22)$$

ce qui est sensiblement plus long que les temps en régime impulsif. A nouveau pour $n_i \approx 10.000 \text{ cps}$, le temps T de l'expérience est ramené à presque 7 h d'acquisition, ce qui est la limite acceptable pour effectuer une mesure.

Bruit de Corrélations

Nous avons précédemment montré que pour une expérience donnée, nous pouvons évaluer le taux de comptage d'événements coïncidents START/STOP qui représente en fait la valeur non normalisée de la fonction d'autocorrélation. Toutefois, si l'on effectue le calcul et que l'on compare avec une expérience donnée, on trouvera à chaque fois que le creux de dégroupement de photons à délai nul n'est jamais 0 mais toujours positif. Cela est dû au fait que chaque taux de comptage lu sur un détecteur n_i est la somme du taux de comptage du signal vrai n_i^s et du taux de comptage du bruit dû au détecteur lui-même mais aussi à la lumière parasite toujours quelque peu présente à la sortie des spectromètres. Il ne faut pas oublier de considérer également la convolution du signal vrai et du montage qui a forcément une résolution temporelle finie. Ce bruit électronique et optique n_i^b doit donc être pris en compte puisqu'il contribuera à masquer les vraies corrélations étant donné que ce bruit est aléatoire et suit une loi de Poisson. Dès lors on a $n_i = n_i^s + n_i^b$ et pour la fonction $g^{(2)}(\zeta)$ nous avons :

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\zeta) &= \frac{\langle I_1(t)I_2(t+\zeta) \rangle}{\langle I_1(t) \rangle \langle I_2(t) \rangle} \\ &= \frac{\langle [I_1^s(t) + I_1^b(t)][I_2^s(t+\zeta) + I_2^b(t+\zeta)] \rangle}{\langle I_1^s(t) + I_1^b(t) \rangle \langle I_2^s(t) + I_2^b(t) \rangle} \end{aligned} \quad (5.23)$$

Cela se traduit en taux de comptage n_i par :

$$g^{(2)}(\zeta) = \frac{\langle [n_1^s(t) + n_1^b(t)][n_2^s(t+\zeta) + n_2^b(t+\zeta)] \rangle}{\langle n_1^s(t) + n_1^b(t) \rangle \langle n_2^s(t) + n_2^b(t) \rangle} \quad (5.24)$$

En posant à présent le rapport signal sur bruit ρ :

$$\rho = \sqrt{\frac{\langle n_1^s(t) \rangle \langle n_2^s(t) \rangle}{\langle n_1^s(t) + n_1^b(t) \rangle \langle n_2^s(t) + n_2^b(t) \rangle}} \quad (5.25)$$

nous pouvons en déduire la fonction d'autocorrélation corrigée du bruit de notre émetteur (donc de la boîte) $g_s^{(2)}(\zeta)$:

$$g_s^{(2)}(\zeta) = \frac{g^{(2)}(\zeta) - (1 - \rho^2)}{\rho^2} \quad (5.26)$$

On notera que si les taux de comptage sont identiques pour les 2 voies alors la formule pour le rapport signal sur bruit se simplifie et donne :

$$\rho = \frac{\langle n_s(t) \rangle}{\langle n_s(t) + n_b(t) \rangle} \quad (5.27)$$

5.2.3 Autocorrélation de la Transition Excitonique

Mesures Continues

A présent que nous avons introduit tous les paramètres et formules pertinents pour une mesure typique de dégroupement de photons, nous allons présenter des courbes ex-

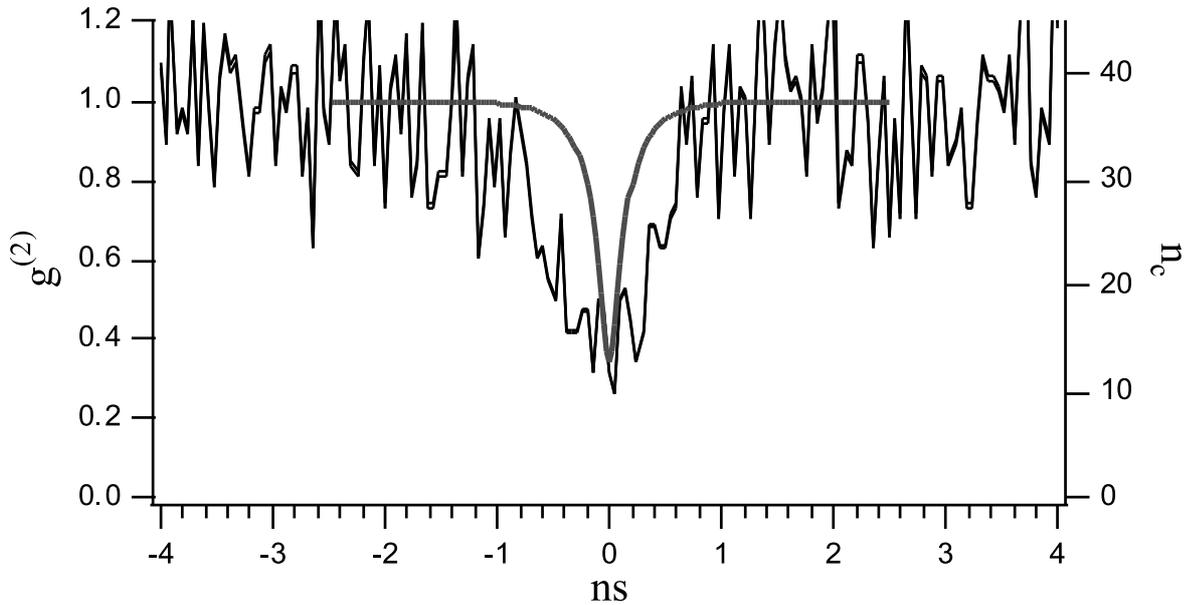


FIG. 5.9 – Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe. n_c représente les événements coïncidents START/STOP et $g^{(2)}(\zeta)$ est la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 après normalisation. La courbe issue de l'ajustement sur le modèle présenté dans la partie 5.1.3 est aussi dessinée.

périmentales obtenues sur des boîtes uniques de CdTe et de CdSe. Dans cette partie les résultats ont été obtenus en excitation continue. Plus loin seront présentées des courbes en régime impulsionnel.

Nous avons vu précédemment que la première chose à faire avant d'effectuer une mesure d'autocorrélation est de savoir où se placer sur la courbe de saturation lorsque l'on effectue la mesure. En premier lieu, on fait donc varier la puissance d'excitation du laser pour obtenir les courbes 6.14 pour un exciton et son biexciton associé. Une fois que l'on sait où l'on se trouve, on effectue la mesure en ayant au préalable utilisé la formule (5.20) pour avoir également une idée du temps d'intégration nécessaire et du pixel temporel adapté. La Fig 5.9 présente le résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe. n_c représente les événements coïncidents START/STOP bruts et $g^{(2)}(\zeta)$ est la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 après normalisation. Les taux de comptage étaient de $n_1 = 10000 \text{ cps}$ et de $n_2 = 7000 \text{ cps}$ avec le bruit associé $n_1^b = 1000 \text{ cps}$ et $n_2^b = 800 \text{ cps}$. Le temps d'acquisition était de $T = 12600 \text{ s}$ (soit 3 h30 min) et le pixel temporel était de $t_b = 49 \text{ ps}$. Nous n'avions pas de compteur qui totalisait tous les événements de chaque détecteur pendant la durée T de l'expérience alors nous avons décidé de normaliser la fonction $g^{(2)}$ à 1 pour le niveau moyen pour le cas loin du délai nul où les événements sont indépendants. Nous avons depuis remédié à ce problème. La courbe issue de l'ajustement sur le modèle présenté dans la partie 5.1.3 est aussi représentée. Nous avons de plus tenu compte de la réponse temporelle de notre système en convoluant le résultat de l'ajustement avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur de 140 ps comme vu au chapitre 4. On notera le désaccord entre expérience et théorie d'un facteur 4 sur la

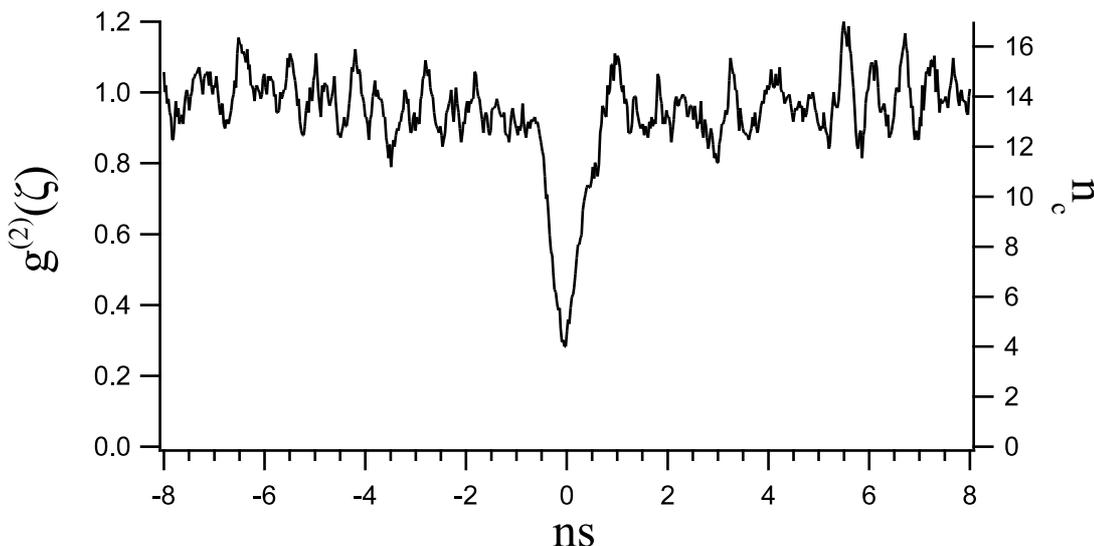


FIG. 5.10 – Idem que figure 5.9 mais sur une boîte quantique de CdSe dans ZnSe. n_c représente les événements coïncidents START/STOP et $g_s^{(2)}(\zeta)$ est la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 après normalisation.

largeur du dégroupement au voisinage de $\zeta = 0$. Nous reviendrons sur ce point dans la partie 5.3 et tenterons de donner une explication à cet effet.

La figure 5.10 représente la même courbe mais cette fois-ci sur un échantillon de boîte quantique de CdSe. Les taux de comptage étaient de $n_1 = 8200$ cps et de $n_2 = 8700$ cps avec le bruit associé $n_1^b = 860$ cps et $n_2^b = 800$ cps. Le temps d'acquisition total était de 8800 s (soit presque 2h30) et le pixel temporel t_b était de 25.5 ps. Utilisant la formule (5.20), le nombre d'événements coïncidents n_c était donc de 16, représenté sur la figure 5.10. On peut estimer le bruit et remonter au 0 de la fonction $g^{(2)}$ représenté sur la Fig 5.10.

On notera que à nouveau, la largeur à mi-hauteur de l'ordre de 650 ps est presque 4 fois plus grande que celle attendue par un ajustement avec le modèle de la partie 5.1.3. Cette courbe n'est pas représentée ici. Il faut enfin ajouter que chaque point de la courbe de la figure 5.10 est la valeur moyenne des dix points adjacents pour plus de clarté (fonction `smoothing` en anglais).

Mesures Impulsionnelles

A présent nous allons décrire des résultats de dégroupement sur une raie excitonique unique mais en régime impulsionnel, avec le laser Titane-Saphir à un taux de répétition de 80 MHz. La figure 5.11 présente un tel résultat sur la même boîte quantique CdTe que nous avons utilisé pour la mesure continue. On peut y voir des pics de corrélations correspondants aux pics laser donc tous les 12.5 ns. Le pic à retard nul est celui, comme attendu, qui présente moins d'événements coïncidents START/STOP. Les taux de comptage étaient de $n_1 = 3000$ cps et de $n_2 = 5200$ cps avec le bruit associé $n_1^b = 350$ cps et

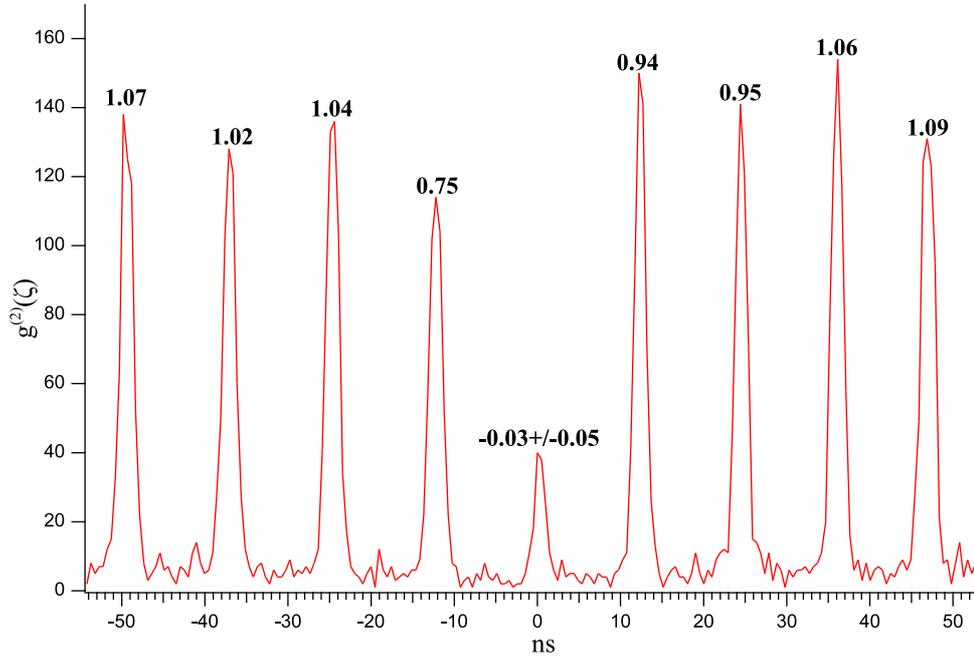


FIG. 5.11 – Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe en régime impulsif.

$n_2^b = 1400 \text{ cps}$. Les valeurs au-dessus de chaque pic sont les valeurs normalisées et corrigées du bruit avec la formule (5.26). Dans de telles conditions, la valeur de la fonction d'autocorrélation au retard nul est de : $g^{(2)}(0) = -0.03 \pm 0.05$, ce qui montre sans équivoque l'unicité du centre émetteur que l'on observait donc l'unicité de la boîte. On notera qu'en théorie, la largeur des pics de chaque impulsion est proportionnelle au temps de vie de la transition que l'on observe. Dans notre cas, puisque les mesures ont été effectuées avec des APDs de gigue temporelle de 350 ps , la largeur des pics était simplement due à la résolution temporelle du montage. Aucune information sur la dynamique du système ne peut être obtenue dans ce cas.

5.2.4 Corrélations Croisées Exciton-Biexciton

Mesures Continues

Nous avons vu dans la partie précédente des mesures d'autocorrélation d'une raie excitonique sur elle-même. Comme déjà mentionné dans 5.1.4, on peut également regarder les corrélations croisées entre photons de longueur d'onde différente provenant de la cascade radiative d'une même boîte, la cascade se produisant entre l'exciton et son biexciton associé. La Fig 5.6 montrait les attentes théoriques d'une telle cascade. La Fig 5.12 montre à présent un résultat expérimental où l'on peut clairement voir un pic de groupement, au temps $t > 0$. Les taux de comptage sont de $n_1 = 7600 \text{ cps}$ (pour l'exciton X) et de $n_2 = 4800 \text{ cps}$ (pour le biexciton X_2) avec le bruit associé $n_1^b = 600 \text{ cps}$ et $n_2^b = 400 \text{ cps}$. Le temps d'acquisition total T était de 9720 s soit à peu près $2h40$ et le pixel temporel

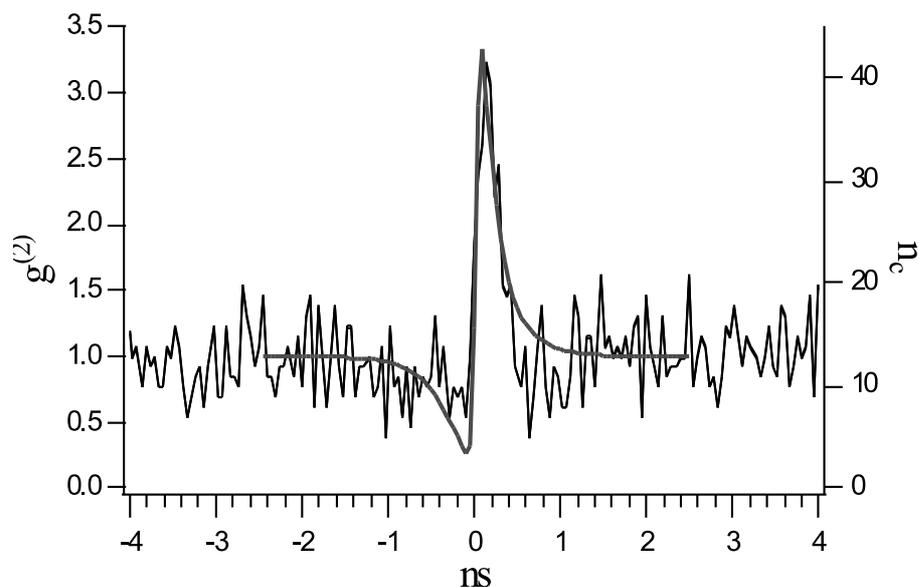


FIG. 5.12 – Résultat expérimental de dégroupement de photons sur une boîte unique de CdTe dans ZnTe en régime continu.

de 49 ps. Avec l'aide de la formule (5.20), on en déduit que $n_c^{théo} = 17.4$, ce qui, toujours à l'incertitude des mesures, est bien ce que l'on observe expérimentalement sur la figure 5.12. La courbe en traits pleins est le résultat de l'ajustement utilisant le modèle multiexcitonique en échelle avec un paramètre de saturation (obtenu grâce aux courbes de saturation de la Fig 6.14) de $0.204/\tau_X$.

Cette fois-ci, contrairement aux mesures d'autocorrélation, l'ajustement est en bon accord avec le résultat expérimental, du moins pour la partie groupement. Une exponentielle décroissante avec un temps caractéristique de 200 ps passe très bien par les points expérimentaux, montrant bien que les ordres de grandeurs sont cette fois-ci respectés. La partie dégroupement aux temps $t < 0$ n'est elle pas très visible ce que nous ne pouvons expliquer puisque le bruit n'est pas suffisant pour être le seul responsable de cela. Cela reste une question ouverte qui peut de toute façon être en relation avec les problèmes d'ajustement déjà rencontrés pour l'autocorrélation en mode continu. Cette courbe n'est pas moyennée comme celle montrée sur la figure 5.10 mais si l'on effectue un travail de données on peut tout de même voir qu'il y a une tendance à la baisse des coïncidences pour $t < 0$.

Mesures Impulsionnelles

Pour finir cette partie, nous devons présenter une expérience qui, bien que nécessitant d'être refaite, paraissait naturelle après les expériences de corrélations croisées $X - X_2$ en régime continu. En effet, en régime impulsionnel, nous avons refait l'expérience précédente mais cette fois-ci en plaçant des polariseurs devant chaque spectromètre donc sur chaque

raie excitonique.

Nous avons vu au chapitre 3, partie 3.3.3, que le dédoublement du niveau excitonique était une raison qui empêche l'observation d'intrication dans la cascade biexciton-exciton. Toutefois, nous avons vu aussi que de fortes corrélations en polarisation sont tout de même attendues. En effet, l'état quantique n'est pas intriqué selon la formule (3.11) mais l'état peut s'écrire de la forme (3.12). Ce qui veut dire que si l'on place les directions des axes des polariseurs parallèles entre eux, on devrait avoir une forte corrélation, donc un effet de groupement, groupement de photons au pic de retard nul. Par contre, lorsque les polariseurs sont croisés, alors il n'y a plus aucune raison d'avoir des corrélations entre un biexciton de polarisation disons horizontale (notée H) et un exciton de polarisation verticale (notée V). Cela est dû au fait que l'exciton provient forcément d'une autre cascade puisque sa polarisation est différente de celle du biexciton (cf. section 3.3.3). La Fig 5.13 montre les résultats obtenus sur la cascade biexciton-exciton avec sélection en polarisation. On observe clairement que lorsque les polariseurs sont parallèles entre eux ($H(XX)H(X)$ et $V(XX)V(X)$) un effet de groupement important est observé. Comme nous venons de le dire, on s'attend à ce que lorsque l'on croise les polariseurs ($H(XX)V(X)$ et $V(XX)H(X)$) le phénomène de dégroupement de photons apparaisse et le pic à délai nul disparaisse. On peut voir qu'il n'en est rien sur la figure 5.13. Toutefois, qualitativement, l'effet est observé puisqu'il n'y a plus de groupement de photons observé pour des conditions expérimentales où les polariseurs sont croisés, toute chose étant égale par ailleurs.

Deux explications peuvent être mises en avant pour rendre compte de ce phénomène. La première est que lorsque l'on travaille en polarisation horizontale ou verticale, il faut préciser par rapport à quoi. Des expériences ont montré les axes privilégiés de polarisations linéaires suivent les axes de clivage de l'échantillon [8]. Toutefois, il apparaît que cela n'est qu'une tendance et que cela peut changer en fait d'une boîte à l'autre. Cela veut dire que les axes des polariseurs n'étaient peut être pas bien parallèles avec les axes propres de la boîte à l'étude. Ceci n'est cependant qu'une partie de l'explication. L'autre partie serait la présence d'un retournement de spin de l'exciton et donc un passage "horizontal" d'un niveau à l'autre (voir figure dans section 3.3.3). Cela aurait pour conséquence de créer à présent des corrélations entre un biexciton H et un exciton V de la même cascade puisque celui-ci a vu un retournement du spin de son électron et de son trou en une fois. Cet effet a été observé par 2 groupes, le groupe de Y. Yamamoto à Stanford [10] et le groupe de P. Michler à Stuttgart [11]. Ce dernier a d'ailleurs effectué ces mesures sur des BQs II-VI de CdSe dans ZnSe. Santori et al. [10] de l'équipe de Stanford ont défini une grandeur caractéristique pour mesurer le degré de corrélation entre les polarisations de X_2 et de X . Ce paramètre χ_{HV} est donné par :

$$\chi_{HV} = \frac{\sqrt{C_{HH}C_{VV}} - \sqrt{C_{HV}C_{VH}}}{\sqrt{C_{HH}C_{VV}} + \sqrt{C_{HV}C_{VH}}} \quad (5.28)$$

où C_{ij} représente le résultat de la corrélation croisée entre l'exciton de polarisation i et le biexciton de polarisation j . Cette mesure de contraste χ_{HV} en quelque sorte peut varier de 1 à -1 en passant par 0. $\chi_{HV} = 1$ étant le cas où les corrélations sont parfaites, $\chi_{HV} = 0$ lorsqu'il n'y a pas de corrélations et $\chi_{HV} = -1$ lorsque les anti-corrélations sont

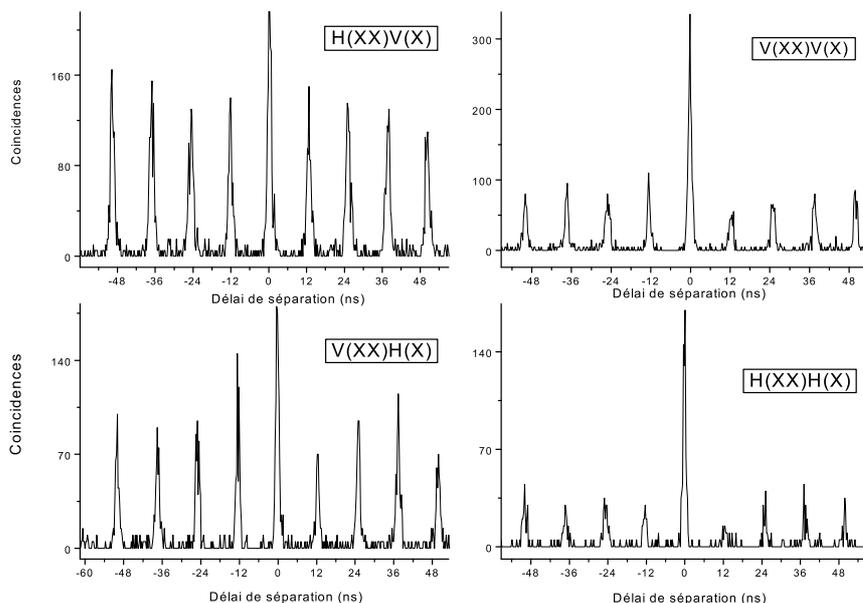


FIG. 5.13 – Corrélations croisées biexciton-exciton en fonction de la polarisation des photons émis par la cascade. 4 cas de figures : $H(XX)V(X)$, $V(XX)V(X)$, $V(XX)H(X)$ et $H(XX)H(X)$.

parfaites. En mesurant ce facteur, les auteurs prétendent même pouvoir en déduire un temps caractéristique de retournement relié à ce contraste de polarisation.

Malheureusement, nos observations ne peuvent être que qualitatives et non quantitatives. En effet, les mesures de C_{ij} se font en utilisant la fonction (5.26) pour connaître la normalisation d'un pic donné comme dans le cas de la figure 5.11. Toutefois, la valeur théorique (utilisant les taux de comptage donc) ne correspond pas du tout à la valeur expérimentale trouvée. Un facteur 4 à 5 différent est observé ce qui est énorme et peut être interprété comme étant une défaillance expérimentale de notre montage. Les fluctuations du laser de pompe sont aussi peut être la cause de ce facteur 4. En effet, des sauts soudain, des bouffées de photons du laser pourrait être l'explication. De plus, pour des raisons pratiques, nous n'avons pas eu l'occasion de revenir sur de telles expériences, ce qui est fort regrettable.

5.3 Amélioration des Modèles

5.3.1 Présence de l'Exciton Noir

Dans la partie précédente, il apparaît que les résultats obtenus sur l'autocorrélation d'un exciton d'une boîte quantique en régime continu d'excitation ne sont pas complètement expliqués. En fait, le problème est d'expliquer la largeur importante du creux de

dégroupement à délai nul. Dans un premier temps, il nous est apparu naturel de prendre en compte l'exciton noir (X_d avec d pour dark). En effet, les résultats présentés ont été obtenus pour une excitation laser au-dessus de l'énergie du gap du matériau barrière de la boîte. Le spin de l'électron et du trou n'étant pas conservé durant le processus de désexcitation jusque dans la boîte quantique et avant émission du photon, il y a autant de chance de créer un exciton brillant (X_b donc radiatif) qu'un exciton noir (X_d non radiatif) dans la boîte. Sachant cela, on doit prendre en compte ce niveau et l'insérer dans un nouveau modèle. La Fig 5.14-a) montre la prise en compte de l'exciton noir dans le cas où l'on restreint tout d'abord le problème à un seul exciton dans la boîte. Avant de calculer la fonction d'anticorrélation des photons de cet exciton, il faut tout d'abord estimer le temps de vie $1/\Gamma_{X_d}$ de l'exciton noir, temps que l'on injectera dans les équations d'évolution.

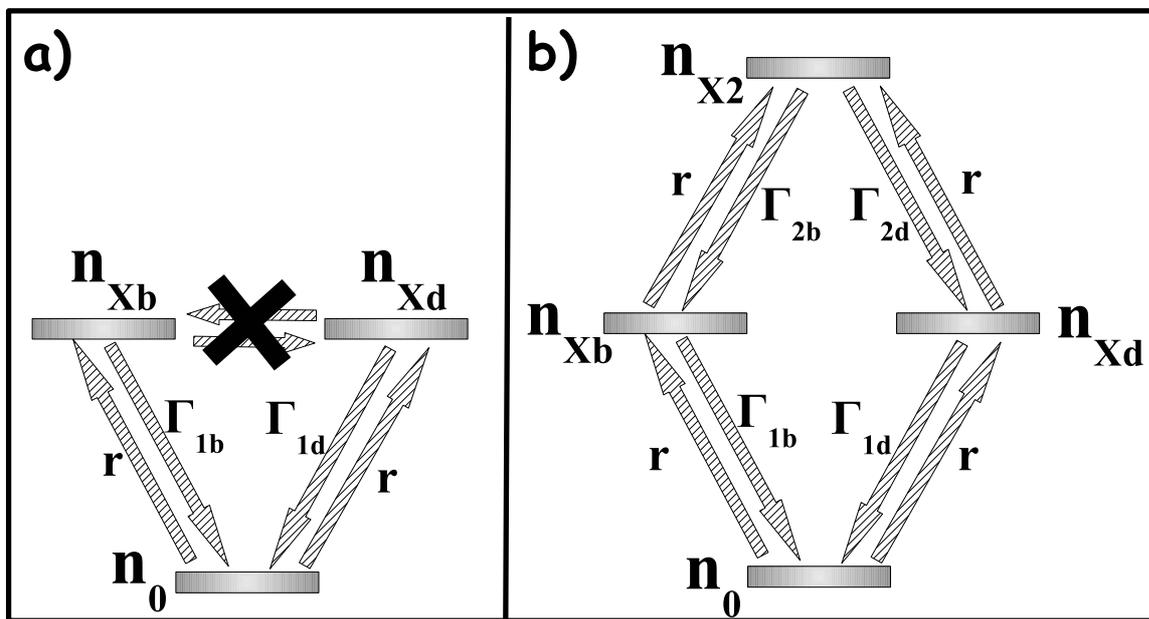


FIG. 5.14 – a) Schéma de niveaux de l'exciton seul avec ces 2 populations égales brillantes n_{X_b} et noires n_{X_d} . b) Même schéma que a) avec prise en compte du biexciton en plus.

Il est raisonnable de penser que le temps de vie de l'exciton noir non-radiatif est de par sa nature non-radiative plus long que celui de l'exciton brillant qui lui est radiatif. Il n'y a pas jusqu'à présent dans la littérature de mesure directe de ce temps. En revanche, on peut estimer que ce temps sera supérieur d'au moins 100 fois celui du temps de vie de l' X radiatif. C'est ce qui est ressorti des calculs de populations de niveaux à plusieurs excitons de la référence [5]. Nous prendrons donc $\tau_{X_d} = 100\tau_{X_b}$. Toutefois, l'exciton noir a déjà été observé, à basse énergie, sous champ magnétique mais aussi à champ nul dans des boîtes quantiques CdTe justement [20]. L'écart énergétique entre X_d et X_b a été trouvé comme étant de l'ordre de $600 - 700 \mu eV$ à une énergie plus basse que celle de l'exciton brillant. Le fait de pouvoir voir un exciton noir suggère que celui-ci possède donc une certaine force d'oscillateur et donc un temps de vie fini et pas infiniment long. Pour information, l'exciton noir n'a jamais été observé dans des BQs de la famille des III-V

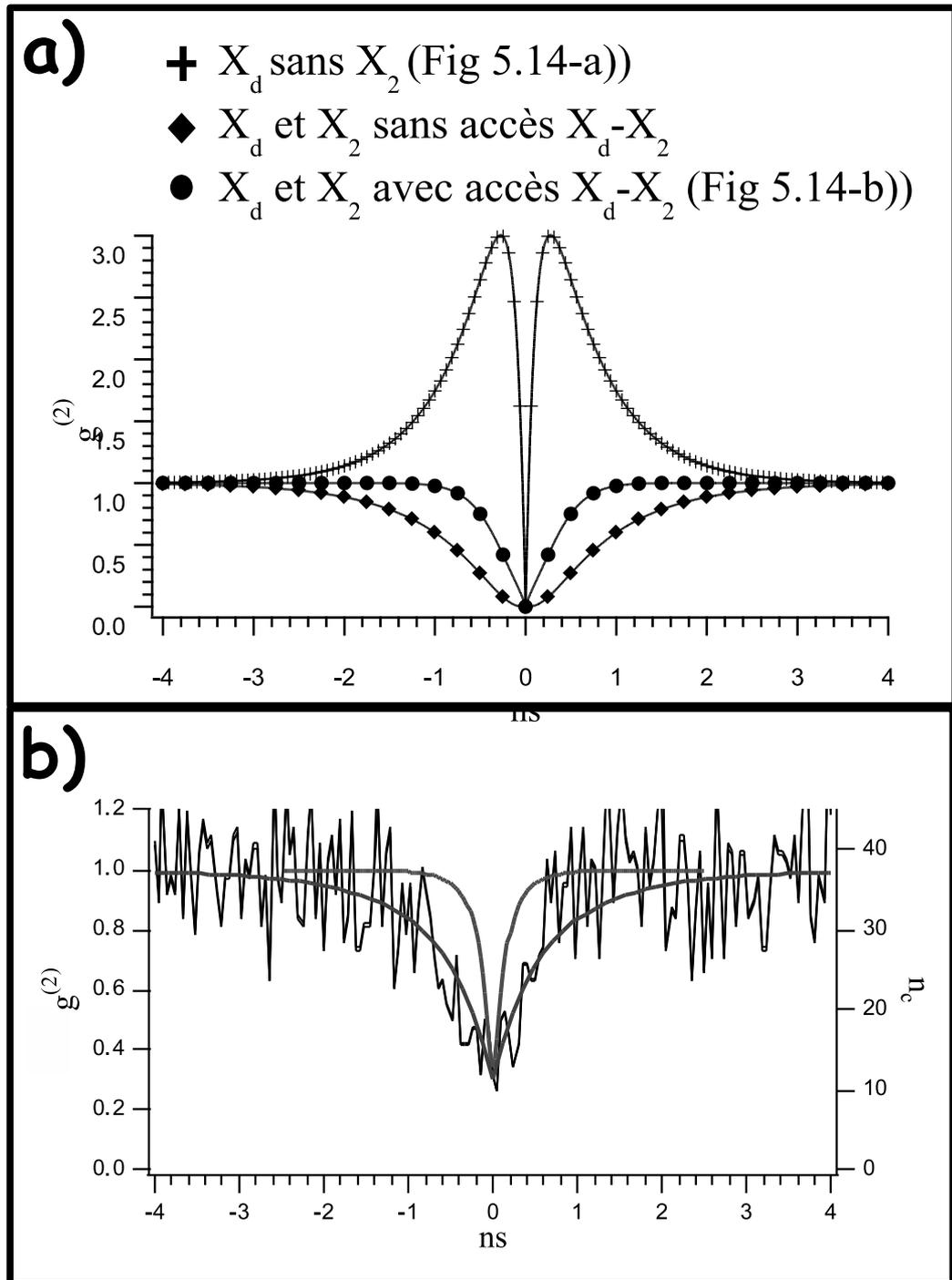


FIG. 5.15 – a) Courbes issues des modèles donnés par la figure 5.14 avec un paramètre de saturation de $r = 0.65 \Gamma_{X_b}$. b) Superposition de la courbe issue du modèle donné sur la figure 5.14-b) (avec prise en compte de la résolution temporelle) avec le résultat expérimental obtenu.

suggérant que l'écart énergétique est beaucoup plus faible dans ce cas. En principe, il faut aussi introduire un taux de passage des états radiatifs vers les états non-radiatifs dû à un retournement de spin (**spin flip** en anglais) de l'électron ou du trou. On considère généralement que le transfert se produit avec absorption ou émission d'un seul phonon acoustique pour passer d'un niveau à l'autre. Les temps de transfert (de brillant vers noir ou de noir vers brillant) suivent une distribution de Bose, fonction de la température. Toutefois, à basses températures (de l'ordre de $4 - 5 K$) ce taux de transfert peut être négligé, c'est ce qui est symbolisé par la croix sur la figure 5.14-a).

La Fig 5.14-b) présente le même schéma qu'en a) mais avec une prise en compte du biexciton et donc un passage possible de X_2 vers X_d puis vers la boîte vide. Chaque désexcitation est représentée par Γ avec l'indice approprié. Dans de telles conditions, nous avons calculé la fonction d'autocorrélation d'ordre 2 ($g^{(2)}$) comme en 5.1.2 et 5.1.3 pour 3 cas de figures différents. La Fig 5.15-a) présente 3 courbes pour 3 situations différentes. La courbe avec croix est le cas de la figure 5.14-a) avec seulement X_b et X_d considérés. On retrouve le caractère de groupement de photons aux temps proches de 0 avant de plonger vers le dégroupement à nouveau lorsque l'on se rapproche du délai nul. Cela rappelle le modèle multiexcitonique de la partie 5.1.3. Le courbe avec losanges prend elle en compte le biexciton mais sans considérer que le passage X_2 vers X_d soit possible d'où une largeur du dégroupement très large. Cela se comprend bien dans ce cas, il s'agit presque de pompage optique puisque la population vient se piéger dans le niveau de l'exciton noir. Enfin, le troisième cas de figure, le plus intéressant, intervient lorsque l'on considère le cas de la figure 5.14-b). La courbe avec cercles noirs en est le résultat. Ceci est intéressant car dans ce cas, le résultat reproduit bien la forme expérimentale observée (i.e pas de phénomène de groupement de photons) et reproduit bien la largeur expérimentale trouvée. Comme dans le cas de la figure 5.9, en considérant la réponse temporelle du montage plus le bruit d'obscurité, la figure 5.15-b) montre que la courbe calculée est en bon accord avec la courbe expérimentale. La courbe d'ajustement précédente (sans prise en compte de l'exciton noir) est aussi représenté. On notera que pour effectuer cette simulation, nous avons utilisé le paramètre de saturation adéquat, c'est à dite $0.65 \Gamma_{X_b}$, des temps de biexciton et d'exciton noirs 100 fois plus grand que leur biexciton et exciton associé et les temps de vie habituels de X et X_2 . Sur cet exemple, le seul paramètre ajustable est le temps des excitons noirs que nous avons pris 100 fois plus grand que les excitons brillants. Cela peut paraître arbitraire mais il semble tout de même que l'ordre de grandeur soit raisonnable. De plus, la largeur à mi-hauteur tend à ne plus s'élargir pour des temps 50 fois plus grand que les durées de vie des excitons brillants.

5.3.2 Piégeages Profonds

A présent qu'il semble que nous ayons trouvé une raison de cet élargissement important du creux de dégroupement à délai nul, nous pouvons essayer de trouver des expériences complémentaires pour corroborer l'hypothèse de l'exciton noir. Si celui-ci est présent dans la boîte de façon équiprobable avec l'exciton brillant alors lors d'une mesure directe de temps de vie, on devrait voir 2 temps caractéristiques. Un temps court correspondant à l'exciton brillant et un long correspondant à l'exciton noir. Cela en supposant bien entendu que notre résolution spectrale ne nous permet pas de différencier les deux raies spectrales

(a priori nous ne voyons pas optiquement l'exciton noir avec notre montage), et que l'on mesure bien les raies d'émissions lors d'une mesure de durée de vie. Dans le chapitre 3, partie 3.4.2 nous avons montré de telles mesures où en effet, l'on observe 2 temps, un court de 251 ps et un long de 3.22 ns , soit un facteur 13 entre les 2. Ceci recouperait donc les mesures d'autocorrélations et les modèles utilisés. De plus, si l'on suppose un modèle où il n'y a pas de communication entre le biexciton et l'exciton noir alors l'on ne devrait pas observer de temps longs pour le biexciton, ce qui n'est pas le cas. Cela va bien dans le sens du modèle présenté sur la figure 5.14-a). Encore que ce point soit discutable puisque nous avons vu au chapitre 3 qu'il y avait toujours plus ou moins du mélange de bandes de valence rendant les excitons noirs, "un peu" brillants.

Il y a toutefois deux objections à faire avant de conclure que nous avons complètement répondu à la question de la largeur temporelle du dégroupement. Tout d'abord dans les modèles précédents, nous supposons des temps pour l'exciton noir qui sont beaucoup long que quelques ns et plutôt de l'ordre de quelques dizaines de ns . On pourrait toutefois encore expliquer cela en argumentant que les mesures de durées de vie sont effectuées en régime impulsionnel tous les $12.5 \text{ ns} < 20 - 30 \text{ ns}$. Il paraît donc difficile d'observer de tels temps longs avec un tel dispositif.

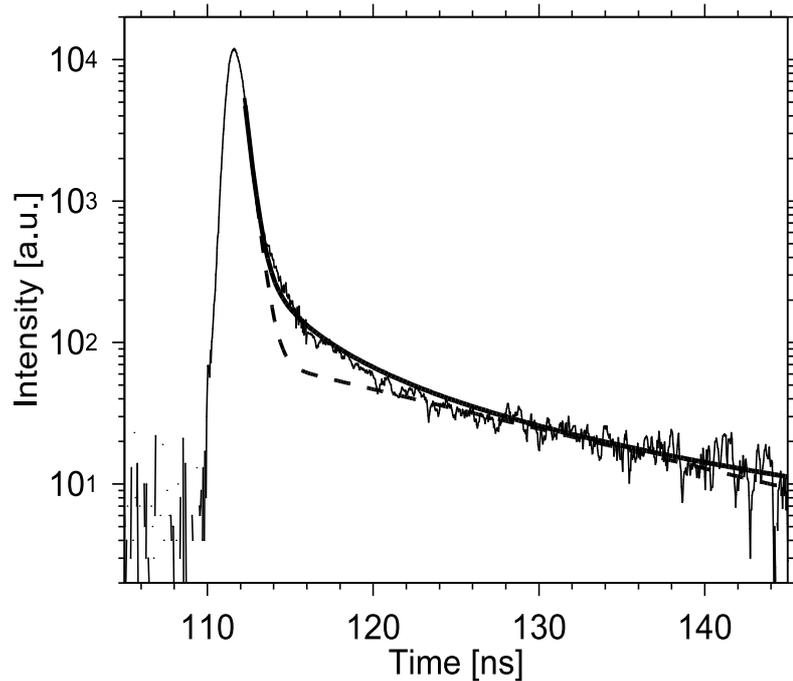


FIG. 5.16 – Courbe de durée de vie d'un boîte quantique unique de CdTe. Comparaison des ajustements avec le résultat expérimental, voir texte.

Par contre, la deuxième objection vient de l'allure des courbes de déclin elle-mêmes. En effet, nos collègues de Varsovie en Pologne ont ensuite étudié ce même échantillon en faisant varier la température [13]. Pour différentes températures, ils enregistraient les durées de vie de l'exciton et du biexciton. Pour les deux types d'excitons, il est impossible

d'ajuster les courbes expérimentales par une somme de 2 exponentielles décroissantes. Les courbes issues de nos résultats sont le résultat d'ajustements effectués séparément sur chaque composante, la longue et la courte. La Fig 5.16 montre leur résultat de durée de vie avec 2 courbes d'ajustement. Une en tirets qui est une somme de 2 exponentielles et une autre en traits pleins. Il est clair que la courbe en tirets n'est pas bien appropriée surtout au niveau de la coupure temps courts/temps longs. En revanche, la deuxième courbe en traits pleins est bon accord avec l'expérience. Pour obtenir ce résultat, les auteurs Piechal et al. ont utilisé la fonction suivante :

$$I(t) = a.exp((t - t_0)/\chi)^\delta) \quad (5.29)$$

avec $\delta = 0.2$ dans ce cas précis. Une telle fonction est considérée dans le cas où il y aurait une relaxation lente d'états à plus hautes énergies que la boîte qui viendraient peupler doucement la boîte, donc aussi bien le niveau excitonique que le niveau biexcitonique [14]. Ces états à plus hautes énergies qui se déverseraient doucement dans la boîte que l'on étudie viendraient d'autres boîtes environnantes ou de la couche du matériau barrière. De plus, il est raisonnable de penser que ces effets de piégeages peuvent coexister avec les effets dûs aux excitons noirs. Cette possibilité est actuellement en cours d'étude.

5.4 Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre

Nous avons vu dans la partie 5.1, que l'allure de la fonction $g^{(2)}$ théorique d'autocorrélation pouvait changer significativement selon les puissances d'excitations et selon les modèles employés. La présence équiprobable d'un exciton brillant et d'un exciton noir dans la boîte est quelque chose qui en principe devrait être observable expérimentalement (ceci en excitant en dehors du gap du matériau barrière bien évidemment). Or jusqu'à présent, aucun groupe, nous inclus, n'a pu mettre en évidence l'exciton noir par des mesures de corrélations de photons dans des boîtes quantiques auto-organisées. La présence de niveaux métastables (vocabulaire de la physique atomique pour décrire une transition optiquement inactive comme l'exciton noir dans une boîte) a été observé par des mesures de $g^{(2)}$, entre autre, dans des nanocristaux de diamant contenant des centres NV (voir chapitre 2, section 2.2.4) [15, 16]. Dès lors, nous devrions être capable de différencier des régimes d'excitations différents comme celui donné par la figure 5.5 de la partie 5.1.3 où un fort groupement de photons est observé juste avant l'habituel dégroupement. Nous devrions aussi être capable de voir les différentes contributions groupement-dégroupement lorsque l'on effectue des corrélations croisées. La figure 5.6 de la section 5.1.4 issue d'un calcul théorique montre bien l'évolution des différents poids groupement/dégroupement selon la puissance d'excitation. Dans notre cas, il semble que nous ne sommes capable que d'observer certains régimes (ceux où l'on a au moins deux excitons dans la boîte et où l'on doit considérer un exciton ET un biexciton noir) et que nous ne pouvons pas accéder à l'approximation où seulement un exciton brillant ou un exciton noir est créé. Pour une puissance suffisamment faible, ce régime doit être accessible. Si ce n'est pas le cas, alors le modèle habituel utilisé depuis plusieurs années qui consiste à considérer seulement X_b et X_d dans une boîte quantique devrait être sérieusement remis en cause.

Il serait aussi bon de compléter nos expériences par la variation d'autres paramètres. La température notamment est un bon moyen de connaître mieux le système que l'on étudie. En effet, nous avons exclu au chapitre 5, partie 5.3 la possibilité de retournement de spin de l'électron ou du trou et donc le passage d'un exciton noir à un exciton brillant. Il semble qu'énergétiquement, ce passage ne soit pas favorable à 4 K. Toutefois, il serait intéressant d'effectuer des mesures de corrélations à différentes températures. Comme l'on montré Tinjod et al. [17], l'émission de boîtes quantiques CdTe peut s'observer jusqu'à 85 K. Pour des boîtes quantiques de CdSe dans ZnSe, la température peut atteindre 200 K tout en émettant des photons uniques à cette température [18]. Il serait alors pertinent de voir qualitativement et quantitativement l'évolution du dégroupement de photons en fonction de la température et voir si une énergie d'activation apparaît à une certaine température. On pourrait par exemple imaginer de voir des "ailes" de groupement (voir la Fig 5.5, section 5.1.3) apparaître au-dessus d'une certaine température, i.e. observer le 'spin flip' de X_b à X_d et réciproquement. On pourrait alors statuer pour sûr entre un modèle et un autre.

L'énergie d'excitation est certainement aussi un paramètre pertinent à étudier. L'évolution de l'antibunching en fonction de l'énergie d'excitation est une bonne étude à faire. A nouveau, on pourrait imaginer d'observer un changement de comportement de l'allure de la fonction $g^{(2)}$ en dessous d'une énergie donnée, par exemple en-dessous de la couche de mouillage. Une excitation quasi-résonnante (à un phonon LO pour commencer simplement) ne devrait engendrer dans la boîte que la création d'un seul exciton (puisqu'elle ne laisserait pas de "place" énergétique pour un autre exciton) et donc le comportement devrait changer en dehors de cette condition d'excitation. Même si l'énergie est attendue de jouer un rôle essentiellement sur la cohérence, on comprend bien que ce paramètre influencera tout de même des mesures d'autocorrélations dans le sens ou le nombre de porteurs créés ne sera pas le même dans tout les cas. Très récemment, Ulrich et al. [19] de Stuttgart ont démontré le passage de $X - X_2$ neutres à $X - X_2$ chargés en fonction de l'énergie d'excitation. Dans des boîtes de InAs dans GaAs, ils ont observé les raies X et X_2 pour une excitation dans le gap de GaAs et ils ont observé les lignes X^- et X_2^- pour une excitation résonnante. Dans ce dernier cas, l'autocorrélation sur la raie X_2^- est pratiquement sans fond, indiquant l'émission de photons uniques quasi-parfaite. Il serait aussi intéressant de voir l'évolution de l'antibunching lorsque l'on excite à deux longueurs d'ondes différentes, une en résonance et l'autre non. Que se passerait-il alors sur l'autocorrélation ? Que donnerait une mesure d'autocorrélation entre X^- et X ?

Enfin, sur ce type d'expériences, il serait aussi intéressant de mesurer $g^{(2)}$ en présence d'un champ magnétique. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, sous champ magnétique, des mélanges de la bande de valence apparaissent donnant lieu à l'émission "visible" de l'exciton noir dans certains cas [20]. On pourrait alors effectuer des mesures d'antibunching sur la raie d'émission attribuée à l'exciton noir X_d . Nous avons vu que la largeur du dégroupement devait en principe nous renseigner sur la durée de vie de la transition étudiée. Dans ce cas, cela nous renseignerait sur la durée de vie de l'exciton noir, chose qui jusqu'à présent reste très flou. De telles mesures pourraient être compléter par des mesures de temps de vie directes comme il a déjà été fait par Stevenson et al. [21].

Bibliographie

- [1] *Multiexciton Spectroscopy of a Single Self-Assembled Quantum Dot.*
E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, D. Spektor, J. M. Garcia, et P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. **80**, 4991 (1998).
- [2] *Carrier-carrier correlations in an optically excited single semiconductor quantum dot.*
E. Dekel, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, J. M. Garcia, et P. M. Petroff, Phys. Rev. B **61**, 11009 (2000).
- [3] *Cascade evolution and radiative recombination of quantum dot multiexcitons studied by time-resolved spectroscopy.*
E. Dekel, D. V. Regelman, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld, et P. M. Petroff, Phys. Rev. B **62**, 11038 (2000).
- [4] *Semiconductor Quantum Dot : A Quantum Light Source of Multicolor Photons with Tunable Statistics*
D. V. Regelman, U. Mizrahi, D. Gershoni, E. Ehrenfreund, W. V. Schoenfeld, et P. M. Petroff, Phys. Rev. Lett. **87**, 257401 (2001).
- [5] *Spectroscopie optique de boîtes quantiques uniques de semiconducteurs II-VI.*
L. Besombes, Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier (2001).
- [6] *Etude d'une source solide monomode de photons uniques constituée par une boîte quantique semiconductrice dans une microcavité optique.*
E. Moreau, Thèse de Doctorat de l'Université Paris VI Pierre et Marie Curie (2002).
- [7] *Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots.*
E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.M. Gérard, et I. Abram, Phys. Rev. Lett. **87**, 183601 (2001).
- [8] *Quantum cascade of photons in semiconductor quantum dots.*
D. Block, R. Romestain, P. Edel, et S. Fränke, J. of Lum. **53**, 339 (1992).
- [9] *Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots.*
D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, et D. Park, Phys. Rev. Lett. **76**, 3005 (1996).
- [10] *Polarization-correlated photon pairs from a single quantum dot.*
C. Santori, D. Fattal, M. Pelton, G.S. Solomon, et Y. Yamamoto, Phys. Rev. B **66**, 45308 (2002).
- [11] *Triggered polarization-correlated photon pairs from a single CdSe quantum dot.*
S.M. Ulrich, S. Strauf, P. Michler, G. Bacher, et A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **83**, 1848 (2003).

- [12] *Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface.*
L. Besombes, K. Kheng, et D. Martrou, Phys. Rev. Lett. **85**, 425 (2000).
- [13] *Long decays of excitonic photoluminescence from CdTe/ZnTe individual quantum dots.*
B. Piechal, J. Suffczynski, A. Trajnerowicz, M. Goryca, P. Kossacki, A. Golnik, et J. A. Gaj, accepté à Acta Phys. Pol. A.
- [14] *Models of Hierarchically Constrained Dynamics for Glassy Relaxation.*
R. G. Palmer, D. L. Stein, E. Abrahams, et P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **53**, 958 (1984).
- [15] *Nonclassical radiation from diamond nanocrystals.*
A. Beveratos, R. Brouri, T. Gacoin, J.P. Poizat, et P. Grangier, Phys. Rev. A **64**, 61802 (2001).
- [16] *Réalisation expérimentale d'une source de photons uniques par fluorescence de centres colorés dans le diamant ; application à la cryptographie quantique.*
A. Beveratos, Thèse de Doctorat de l'Université Paris XI-Orsay (2002).
- [17] *CdTe/Zn(1-x)MgxTe self-assembled quantum dot : Towards room temperature emission.*
F. Tinjod, S. Moehl, K. Kheng, B. Gilles, et H. Mariette, J. Appl. Phys. **95**, 102 (2004).
- [18] *Single-photon emission of CdSe quantum dots at temperatures up to 200 K.*
K. Sebald, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, et A. Forchel, Appl. Phys. Lett. **81**, 2920 (2002).
- [19] *Correlated photon-pair emission from a charged single quantum dot.*
S.M. Ulrich, M. Benyoucef, P. Michler, N. Baer, P. Gartner, F. Jahnke, M. Schwab, H. Kurtze, M. Bayer, S. Fafard, Z. Wasilewski, et A. Forchel, Phys. Rev. B **71**, 235328 (2005).
- [20] *Exciton and Biexciton Fine Structure in Single Elongated Islands Grown on a Vicinal Surface.*
L. Besombes, K. Kheng, et D. Martrou, Phys. Rev. Lett. **85**, 425 (2000).
- [21] *Time-resolved studies of single quantum dots in magnetic fields.*
R.M. Stevenson, R.J. Young, P. See, I. Farrer, D.A. Ritchie, et A.J. Shields, Phys. E **21**, 381 (2004).

Chapitre 6

Stratégies d'Excitation et Cohérence

Sommaire

6.1	Importance de l'Excitation sur la Cohérence	152
6.1.1	Principe de l'Excitation Résonnante	152
6.1.2	Excitations Quasi-Résonnantes d'une Boîte Quantique	153
6.1.3	Conséquences sur la Cohérence	155
6.1.4	Mesures de Cohérence en Fonction de la Longueur d'Onde	158
6.2	Excitation Résonnante à 2 Photons du Biexciton	162
6.2.1	Création de l'Exciton et du Biexciton simultanément	162
6.2.2	Résultats sur la Cohérence	164
6.3	Excitation à 2 Photons Infrarouges	167
6.3.1	Description de l'Absorption à 2 Photons de l'Exciton	167
6.3.2	Principe du Pompage Optique sur Exciton Chargé	168
6.3.3	Premiers Résultats sur Boîtes Quantiques Uniques	169
6.3.4	Difficultés Rencontrées	177
6.4	Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre	179

Epitomé

Nous avons vu dans les chapitres précédents et en particulier les chapitres 3 et 5 que les boîtes quantiques présentaient de sérieux avantages pour ce qui est de l'émission de photons uniques. En particulier, les boîtes II-VI sont prometteuses dans le sens où le temps de vie est 5 à 6 fois plus petit que celles à base de composants III-V. Il est apparu également au chapitre 2 que pour pouvoir effectuer des opérations de logique quantique, il était indispensable d'avoir un temps de cohérence T_2 des photons le plus long possible, idéalement $T_2 = 2T_1$ où T_1 est la durée de vie de la transition donc ici de l'exciton. Il faut donc s'intéresser de près à la façon de mesurer la cohérence (à l'aide d'un interféromètre de Michelson déjà décrit au chapitre 4) et surtout à la façon de maximiser cette longueur de cohérence. Pour cela, nous allons montrer que la façon d'exciter une boîte quantique a une influence directe sur les mécanismes de décohérence. Nous décrirons d'abord les techniques d'excitation quasi-résonnante déjà existantes, puis nous décrirons de nouvelles techniques que nous avons mises au point, essentiellement l'excitation à 2 photons visibles et l'excitation à 2 photons infrarouges. Nous discuterons également des expériences possibles lorsque l'on excite à 2 photons infrarouges.

6.1 Importance de l'Excitation sur la Cohérence

6.1.1 Principe de l'Excitation Résonnante

Nous allons tâcher dans cette partie de décrire le cas d'une excitation résonnante et de montrer que c'est idéalement la meilleure façon d'augmenter la cohérence d'une émission.

Le phénomène de résonance optique a été observé pour la première fois par l'américain Wood sur les atomes de sodium en 1905 [1]. A l'aide d'une lampe à décharge de sodium, Wood éclaira un nuage de vapeur de sodium (produit en chauffant avec un bec Bunsen un morceau de sodium dans un ballon de verre sous vide) pour se rendre compte que le faisceau émergent du ballon après traversée de la vapeur était atténué et qu'une partie de son intensité était absorbée. De plus, le nuage de vapeur de sodium lui-même réémettait dans toutes les directions de la lumière à la même longueur d'onde que la lumière incidente. Cette lumière réémise est appelé lumière de fluorescence et dans ce cas particulier il y a résonance optique puisque la longueur d'onde de la lumière réémise est la même que la lumière incidente (au facteur Doppler près).

Regardons à présent comment résoudre le problème d'une excitation électromagnétique sinusoïdale dépendante du temps sur un système à 2 niveaux. Considérons H_0 comme étant l'hamiltonien du système à 2 niveaux envisagé. Soit E_n et $|\varphi_n\rangle$ les états propres et vecteurs propres du système en l'absence de perturbation. A présent considérons une perturbation $W(t)$ dépendante du temps (un champ électromagnétique sinusoïdal par exemple) 'branchée' à $t = 0$. Le nouvel hamiltonien peut s'écrire $H(t) = H_0 + W(t)$ et l'on pose $W(t) = \lambda \tilde{W}(t)$ où λ est un paramètre réel très inférieur à 1. Le calcul que l'on cherche à effectuer est de trouver la probabilité $\varphi_{if}(t)$ du système de passer d'un état initial $|\varphi_i\rangle$ vers un état final $|\varphi_f\rangle$ sachant que l'on est venu perturber le système par une perturbation dépendante du temps. En d'autres termes, il s'agit d'étudier les transitions

qui peuvent être induites par la perturbation $W(t)$ entre les états stationnaires $|\varphi_n\rangle$ du système non-perturbé. Soit $|\psi(t)\rangle$ l'état du système à l'instant t qui va vérifier l'équation de Schrödinger. Il nous faut résoudre cette équation pour pouvoir en déduire la probabilité de transition qui sera donnée par $\wp_{if}(t) = |\langle \varphi_f | \psi(t) \rangle|^2$. L'équation de Schrödinger se résout alors par la méthode des perturbations et l'on trouve au premier ordre la probabilité $\wp_{if}(t)$ qui est donnée par [2] :

$$\wp_{if}(t) = \frac{1}{\hbar^2} \left| \int_0^t e^{i\omega_{fi}t'} W_{fi}(t') dt' \right|^2 \quad (6.1)$$

avec $W_{fi}(t) = \langle \varphi_f | \tilde{W}(t) | \varphi_i \rangle$. On a de plus introduit la pulsation de Bohr $\omega_{fi} = (E_f - E_i)/\hbar$.

La probabilité est une fonction du temps dont l'allure sera directement dépendante de la perturbation elle-même. Pour une perturbation due à un champ électromagnétique, on peut supposer que $\tilde{W}(t) = \tilde{W} \cos(\omega t)$ et dans ce cas, on aura :

$$\wp_{if}(t; \omega) = \frac{|W_{fi}|^2}{\hbar^2} F(t, \omega - \omega_{fi}) \quad (6.2)$$

où W_{fi} est une constante cette fois-ci. La fonction $F(t, \omega - \omega_{fi})$ est, elle, donnée par :

$$F(t, \omega - \omega_{fi}) = \left\{ \frac{\sin[(\omega - \omega_{fi})t/2]}{(\omega - \omega_{fi})/2} \right\}^2 \quad (6.3)$$

Cette fonction est une fonction type sinus cardinal au carré avec un maximum en $\omega = \omega_{fi}$. La largeur $\Delta\omega$ entre les deux premiers minima de cette fonction donne $\Delta\omega = 4\pi/t$. En fait, t est ici identifié comme étant le temps de cohérence T_2 qui nous intéresse (qui doit être le plus grand possible, voir chapitre 2), dès lors $\Delta\omega \propto 1/T_2$.

En conclusion, dans le cas de l'expérience décrite précédemment d'un nuage de vapeur de sodium éclairé par une lampe à sodium, nous venons de démontrer qu'il est naturel de voir de la lumière absorbée puis réémise par le nuage à la même longueur d'onde que l'onde incidente. C'est le phénomène de résonance optique qui est maximum pour précisément $\omega_{lampe} \simeq \omega_{fi}$ où ω_{fi} est la pulsation de Bohr entre des niveaux i et f . De plus, nous venons de voir que dans ce cas précis, la largeur $\Delta\omega$ est inversement proportionnelle au temps de cohérence de la transition atomique (état i vers état f) étudiée. Cet exemple est bien entendu un cas idéal et ne prends pas en compte l'effet Doppler ou encore l'élargissement inhomogène dans le gaz d'atomes due aux collisions entre atomes. Toutefois, on peut pressentir que la façon d'exciter une boîte quantique, donc de créer un exciton dans la boîte est certainement un facteur qui aura une influence sur l'élargissement spectral et donc sur la réduction du temps de cohérence.

6.1.2 Excitations Quasi-Résonnantes d'une Boîte Quantique

Lorsque l'on veut éclairer une transition optique à sa résonance, on peut voir qu'il y a tout de suite un problème à résoudre si l'on veut étudier par exemple la statistique des photons émis. En effet, comment allons-nous différencier la lumière laser de la lumière

de fluorescence? Certainement pas avec un spectromètre puisque les longueurs d'ondes sont les mêmes. De plus, avec des boîtes quantiques, on ne peut pas utiliser les mêmes techniques d'observations que celles de la physique atomique. En effet, lorsque l'on étudie la fluorescence d'un nuage atomique, il est facile de placer un détecteur à la perpendiculaire du faisceau laser incident (ou de la lampe) ce qui évite de "regarder" le faisceau laser dans sa direction d'émission et donc d'être ébloui par son intensité. Si en plus de ce montage optique, on effectue une sélection temporelle du signal (i.e. en travaillant en régime impulsionnel : on ne déclenche le détecteur qu'un certain temps -assez long- après que le laser soit passé) alors on peut être sûr de n'observer principalement que du signal de fluorescence.

Avec des BQs, cela est beaucoup plus compliqué puisque l'on travaille à froid dans un cryostat. L'accès optique est toujours relativement réduit et éclairer à l'orthogonale de l'échantillon est très difficile. De plus, les temps d'attente après l'impulsion du laser sont généralement bien trop long (de l'ordre de 10 ns pour des temps de montée typiques pour activer ou désactiver une photodiode à avalanche) par rapport à la durée de vie elle-même de l'exciton dans la boîte (que l'on rappelle de l'ordre de 200 – 300 ps). Bien sur on pourrait réduire ce temps d'attente mais dès lors 'on verrait' de plus en plus le laser exciteur. Il faut donc trouver une autre façon d'exciter efficacement la boîte quantique (en fait il faut exciter à une autre longueur d'onde!) tout en se rapprochant de la solution idéale de la résonance optique.

La première chose à faire est d'identifier quelle est l'absorption d'une boîte quantique en fonction de l'énergie d'excitation. Pour cela, lorsque l'on a choisi une raie excitonique d'une boîte quantique particulière (par microphotoluminescence de BQs), on place le monochromateur sur la longueur d'onde de la raie d'émission. Supposons que l'exciton qui nous intéresse dans cet exemple émette à la longueur d'onde λ_1 . Avec un laser accordable en longueur d'onde $\lambda_{laser} < \lambda_1$ on balaie λ_{laser} jusqu'au plus près possible de λ_1 (idéalement on aimerait être à λ_1 comme on l'a dit précédemment). On enregistre en même temps sur un compteur de photons en sortie du monochromateur l'évolution de l'amplitude de la raie λ_1 que l'on observe. Ce type de mesure est appelée une mesure d'excitation de la photoluminescence. La Figure 6.1, d'après la référence [3], présente une mesure typique de PLE (pour **Photoluminescence Excitation**). Ce type de mesure varie grandement d'une boîte à une autre, toutefois, on peut tout de même retrouver des constantes sur plusieurs expériences. Cette expérience de Hawrylak et al. a été réalisée avec une boîte quantique unique de $In_{0.6}Ga_{0.4}As$ dans $GaAs$ dans un méso. La courbe en pointillés représente la raie excitonique en excitation non-résonnante (donc obtenu par microphotoluminescence). Les auteurs font ensuite varier la longueur d'onde du laser λ_{laser} jusqu'à se rapprocher le plus possible de cette raie. Deux pics ressortent de cette mesure, l'un à 36 meV (= Δ_{LO}) de l'exciton (d'énergie E_X) et l'autre à 90 meV de l'exciton. Le premier pic représente ce que l'on appelle une 'réplique phonon-LO', LO pour longitudinal optique. En effet, dans $GaAs$, qui constitue le matériau barrière de cette boîte, les phonons de type LO sont discrets et étroits en énergie, avec une énergie de l'ordre de 30 – 40 meV dans de telles structures. Il apparaît donc que l'on peut créer l'exciton en fournissant directement l'énergie E_X suffisante mais aussi en fournissant $E_X + \Delta_{LO}$ en excitant à un phonon LO en plus de l'exciton. Il y a là un phénomène quasi-résonnant à un phonon LO de l'énergie

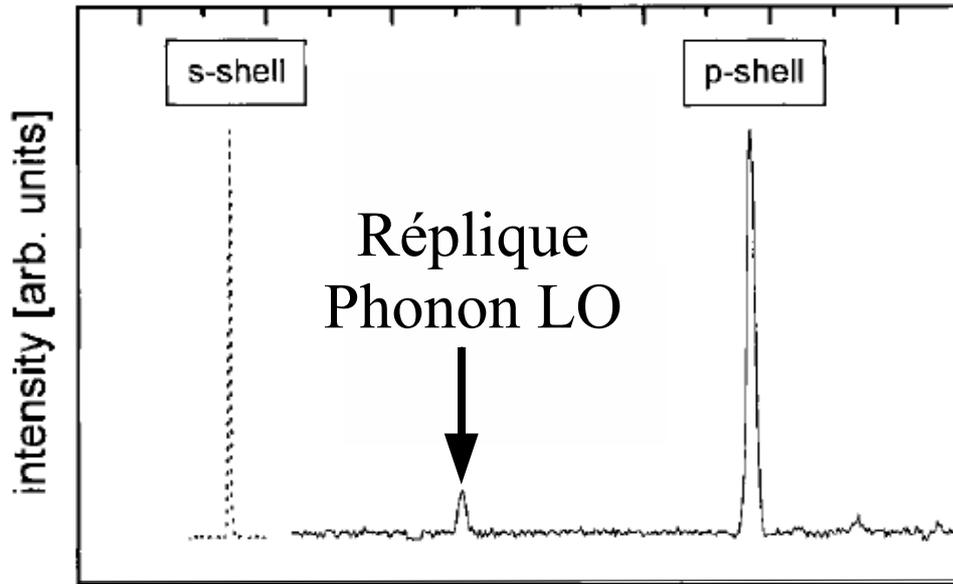


FIG. 6.1 – Excitation de la photoluminescence d’une boîte quantique unique de $In_{0.6}Ga_{0.4}As$. La courbe en pointillés représente la raie sous excitation non-résonnante. D’après [3].

du niveau fondamental de la BQ. Le deuxième pic correspond à un état excité de la boîte, en fait à l’état p de la boîte dont nous avons parlé au chapitre 3, section 3.2.2. Cet état correspond à la recombinaison directe d’exciton de l’état p vers le fondamental de la boîte. Dans la référence [3], les auteurs montrent aussi des spectres de PLE plus complexes de boîtes quantiques possédant même des états d . Toutefois ceci est plutôt exceptionnel et en général, une boîte ne possède qu’un état excité voire pas du tout. Cet état représentera à nouveau un état ‘préférée’ d’excitation de la boîte, donc un état que l’on appelle quasi-résonnant.

Dans les 2 cas de figures (avec un phonon LO ou avec l’état excité) lorsque l’on place le laser d’excitation à ces 2 énergies, sur le spectre, la raie excitonique associée ressort parfaitement seule et sans fond de photoluminescence. Cela se comprend bien puisque dans ces 2 cas, on excite de façon résonnante des niveaux spécifiques d’une seule boîte quantique.

6.1.3 Conséquences sur la Cohérence

Avant de présenter les résultats de mesure de cohérence obtenus avec notre montage, nous allons passer en revue ce qui a été vu dans le passé, quelles sont les techniques utilisées et surtout quelles sont les tendances auxquelles on s’attend.

Tout d’abord, rappelons quelle est la relation entre Υ la largeur en énergie d’une raie d’une émission et le temps de cohérence T_2 associé aux photons émis par ce système. La relation entre les deux est donnée par :

$$\Upsilon = \frac{2\hbar}{T_2} \quad (6.4)$$

Numériquement, on peut montrer que :

$$\Upsilon(\mu eV) = \frac{1320}{T_2(ps)} \quad (6.5)$$

La largeur de raie sera donc de 132, 13.2 et 1.32 μeV pour respectivement des temps de cohérence de 10, 100 et 1000 ps .

Ensuite, à la vue de cette formule, on voit que l'on a accès à T_2 de 2 façons. Soit on mesure T_2 directement par spectroscopie de Fourier [4, 5], ou en effectuant une mesure de mélange à 4 ondes [6, 7]. Soit en mesurant directement la largeur de raie Υ à l'aide d'un monochromateur très résolvant [8, 4]. Historiquement, cette dernière façon de faire, plus simple, a été privilégiée. Gammon et al. [8] ont été les premiers à effectuer de telles mesures sur des fluctuations d'interfaces (qui se comportent comme des boîtes quantiques) d'un puits de GaAs. Ils ont pu mesurer à 4 K , $\Upsilon = 46 \mu eV$. Il faut préciser la température dans ce cas puisque les auteurs ont étudié l'évolution de Υ en fonction de la température. Par spectroscopie à haute résolution, Bayer et Forchel ont trouvé des largeurs de raies qui pouvaient descendre jusqu'à 3–4 μeV pour des boîtes quantiques de $In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs$ [4]. De même, les auteurs ont trouvé une dépendance en température qui est de la forme :

$$\Upsilon = \Upsilon_0 + \gamma_{ac}T + \gamma_{op} \frac{1}{e^{\hbar\omega_{LO}/(kT)} - 1} \quad (6.6)$$

où γ_{ac} représente la contribution des phonons acoustiques à l'élargissement de la raie et γ_{op} représente la contribution des phonons optiques qui ne sont activés qu'à partir d'une certaine température, lorsque $k_B T > \hbar\omega_{LO}$. On peut dès lors distinguer 2 régimes, l'un linéaire de 4 à 40 K lié aux phonons acoustiques et l'autre exponentiel de 40 à 300 K lié aux phonons optiques dans le cas de [4].

La technique de spectroscopie de Fourier à présent, a été employée par plusieurs groupes et notamment par Kammerer et al. [4]. C'est l'approche que nous avons choisie pour les mesures de cohérence étant donné que nous n'avons pas la résolution spectrale directe. La Fig 6.2-a) montre leur résultat de largeur de raie en fonction de la température. On reconnaît là le comportement de Υ (noté Γ sur la figure) en fonction de T , avec un régime linéaire due aux phonons acoustiques et un régime exponentiel due à la raie zéro-phonon de l'exciton.

Kammerer et collaborateurs ont trouvé une largeur de raie pouvant atteindre 7.5 μeV . On notera que cela correspond à un temps de cohérence $T_2 = 175 ps$ ce qui est encore 4 à 5 fois moins que le temps de vie T_1 et donc 10 fois moins que la condition idéale de limite de Fourier $T_2 = 2T_1$. Ceci est tout de même encourageant. Dans le cas de Bayer et al., le temps trouvé était plutôt de 550 ps ce qui devient alors très prometteur. Cela varie d'un échantillon à l'autre et l'on peut trouver des conditions de croissance pour lesquelles T_2 serait ramené plus près de $2T_1$. On notera que dans le cas de Bayer et al. et de Kammerer et al., les valeurs de largeurs de raies minimum ont été trouvées pour une excitation en

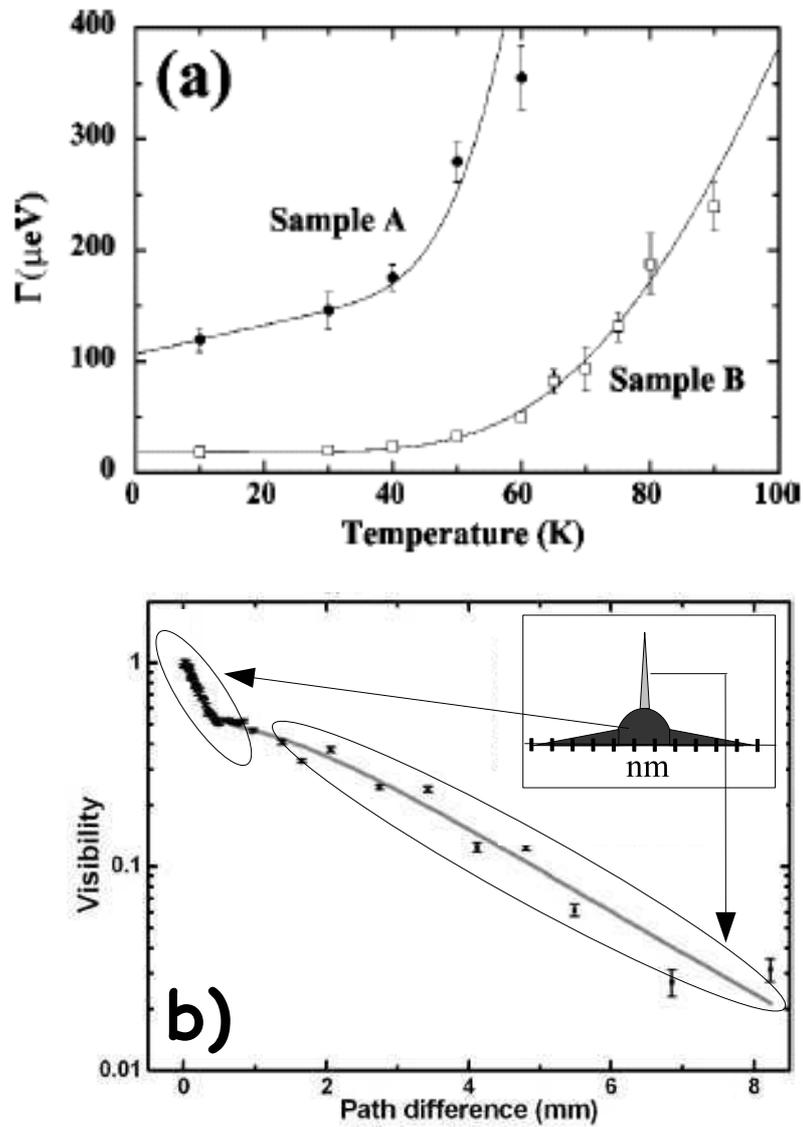


FIG. 6.2 – a) Influence de la température sur la largeur de raie Υ ($\equiv \Gamma$) [4]. b) Courbe de contraste typique en fonction du retard d'un bras de l'interféromètre avec composante courte due aux phonons acoustiques et composante longue due à la raie zéro-phonon [5]. Dans l'encart est représenté l'allure d'un spectre d'émission de boîte quantique avec une raie à zéro-phonon étroite sur un fond large dû aux phonons acoustiques.

quasi-résonance de la boîte, i.e. sur un état excité.

A présent, signalons que d'après la formule (6.6) même à 4 K (ou 2 K!) nous avons toujours une dépendance de Υ avec la température. Le troisième terme peut être négligé mais pas le terme linéaire dû aux couplages avec les phonons acoustiques. Nous devrions nous attendre à voir ce couplage sur la cohérence de la transition qui nous intéresse. La figure 6.2-b) présente une mesure de contraste en fonction du retard d'un bras d'un interféromètre de Michelson, d'après [5]. On voit de façon claire 2 temps caractéristiques (ici longueurs mais l'une étant reliée à l'autre par c), l'un court qui prend presque 40% de la cohérence puis un temps plus long. Le temps court est bien sûr dû aux phonons acoustiques et le temps long à la largeur Υ de la transition elle-même. L'encart de la figure 6.2-b) représente un spectre de raie excitonique avec un pic étroit représentant la raie à zéro phonon et un piédestal large dû aux phonons. Bien entendu, toutes les valeurs de Υ données précédemment ou dans ce qui va suivre sont celles des raies étroites à zéro phonon. Ce couplage exciton-phonon a en fait déjà été observé plusieurs fois dans différents matériaux. Dans tous les cas, ce couplage a pour conséquence d'étaler spectralement le 'pied' d'une transition excitonique [10]. On comprend mieux alors l'apparition d'un temps court sur la cohérence. Cet effet n'est pas toujours aussi prononcé que dans le cas des boîtes InP de [5]; il dépend du poids respectif de chaque contribution. Pour nos applications, ce couplage exciton-phonon doit être réduit au minimum. Dans tous les cas, cet élargissement de la raie dû aux phonons acoustiques nécessite de toujours travailler à basses températures.

6.1.4 Mesures de Cohérence en Fonction de la Longueur d'Onde

Nous allons à présent présenter nos résultats de mesures de longueurs de cohérence sur boîtes quantiques uniques de CdSe.

Pour effectuer ces mesures, nous avons utilisé un interféromètre de Michelson décrit au chapitre 4 dans la partie 4.6. L'une des premières choses à faire est de savoir si l'interféromètre reste stable pendant toute la durée de la mesure et combien de temps au total prend une mesure de contraste. En effet, l'idée de l'expérience est de bouger régulièrement à pas grossiers (de l'ordre de 50 μm), à l'aide d'un moteur pas à pas et d'une vis sans fin, et de s'arrêter à chaque pas pour enregistrer les interférences (et donc connaître le contraste) à l'aide d'un translateur piézoélectrique de résolution inférieure à la longueur d'onde ($< 100 nm$).

Nous avons effectué des mesures sur des boîtes quantiques de CdSe dans ZnSe émettant entre 505 et 520 nm . Nous avons utilisé les photomultiplicateurs à micro-galettes comme compteur de photons sur une raie unique de BQ. Le taux de comptage est typiquement de l'ordre de 1000 *cps*. Chaque pas sur la courbe d'interférences demande 2 à 5 *min* d'acquisition avec une mesure complète de contraste qui comprend entre 20 et 50 points. On peut voir sur la figure 6.3-a) une courbe de contraste de l'émission excitonique d'une BQ à 517.2 nm pour une excitation à 514.5 nm . La courbe comporte 30 points avec un temps d'acquisition de 5 *s* sur chaque point. On voit apparaître clairement les franges d'interférences.

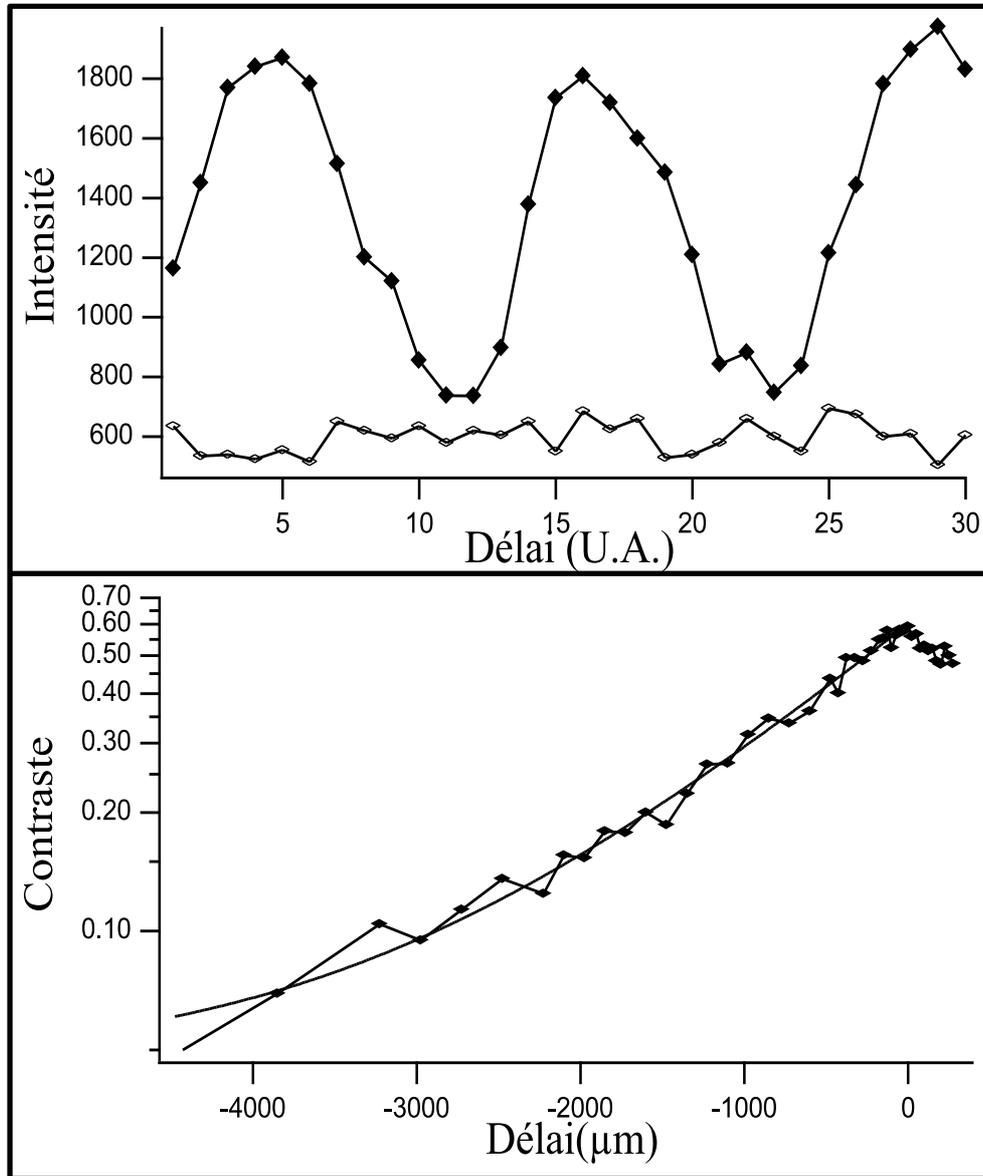


FIG. 6.3 – a) Interférences d'une raie d'émission excitonique d'une boîte quantique unique de CdSe dans ZnSe. Laser d'excitation à 514.5 nm pour une émission à 517.2 nm . La courbe de lumière parasite est superposée à la courbe des interférences. b) Courbe de contraste de la même raie excitonique excitée à 457.8 nm . Un ajustement exponentiel donne une valeur de $T_2 = 4.13 \text{ ps}$.

On notera que dans ce cas, la courbe avec les points en forme de losange représente la lumière parasite. Cette lumière doit être prise en compte lors de la mesure du contraste, elle doit être soustraite. Une fois que nous avons pris cela en considération, la mesure de contraste sur cette exemple donne :

$$C = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} = 78.4\% \quad (6.7)$$

En mode de comptage de photons sur raie unique, nous n'avons jamais dépassé 85 % de valeur de contraste. Ceci nous fait perdre déjà presque un cinquième du signal, donc de précision. En effet, nous avons vu dans la partie précédente que pour certaines situations où la relaxation par phonons acoustiques était dominante, leur effet se ressentait sur le contraste, cf. figure 6.2. Le signal qui nous intéresse se situe donc pour des valeurs de contraste plus faible, en-dessous des 30 – 40%. Nous reviendrons sur ce point plus tard.

La Fig 6.3-b) présente la courbe finale du contraste en fonction du délai en micromètres de l'un des bras de l'interféromètre. Cette courbe a été réalisée sur la même boîte que la Fig 6.3-a) avec une excitation cette fois à 457.8 nm. L'échelle des ordonnées est en échelle logarithmique et la courbe en traits pleins est un ajustement par une fonction exponentielle décroissante. Une valeur de $T_2 = 4.13 ps$ a été trouvée dans ce cas. Cette valeur est très loin de $2T_1 = 500 ps$ que l'on souhaiterait idéalement pour une expérience d'interférences à 2 photons. Toutefois, au vu du résultat trouvé par Gammon et al. [8], et d'autres après eux, il est normal de trouver un temps de cohérence très faible lorsque l'on excite à une énergie au-dessus de la couche de mouillage des boîtes quantiques. En effet, étant fortement plus énergétique que les boîtes quantiques, l'énergie d'excitation excédentaire va créer des phonons supplémentaires et des charges libres qui par interaction avec les excitons des BQs vont avoir pour effet d'élargir la raie d'émission et donc de diminuer le temps de cohérence.

Pour des raisons de temps, nous n'avons malheureusement pas pu effectuer de mesure d'excitation de la photoluminescence pour avoir accès aux états excités de la boîte quantique. Par contre, nous avons effectué plusieurs mesures de longueur de cohérence, donc de contraste en fonction des longueurs d'ondes accessibles par le laser Ar (voir chapitre 4 pour les différentes longueurs d'onde). Nous avons ensuite obtenu une courbe qui donne l'évolution du temps de cohérence T_2 en fonction de l'énergie d'excitation. La Fig 6.4 présente cette courbe. Il apparaît tout de suite que l'effet attendu d'une augmentation du temps de cohérence T_2 (rétrécissement de la largeur de raie) n'est pas retrouvé sur un tel résultat. Au contraire, il semble que plus l'on se rapproche énergétiquement de la raie d'émission excitonique plus le temps de cohérence diminue. Cette courbe est à comparer à celle obtenue par Kammerer et al. par exemple (voir la figure 6.5) qui montre l'effet complètement contraire. Toutefois, Kammerer et al. ont trouvé que le raccourcissement de Υ n'a lieu que pour des énergies d'excitation inférieures à 50 meV. Dans la situation de la figure 6.4, seuls deux points (excitation à 514.5 nm pour une émission à 517.2 nm) se trouvent en dessous de 50 meV de la raie d'émission.

On s'attendrait alors à voir une augmentation de T_2 pour cette longueur d'onde mais il n'en est rien. On notera enfin que la raie d'émission se situe à 517.2 nm et que les 2 excitations les plus proches se situent à 514.5 et 501.7 nm donc respectivement à 14 et

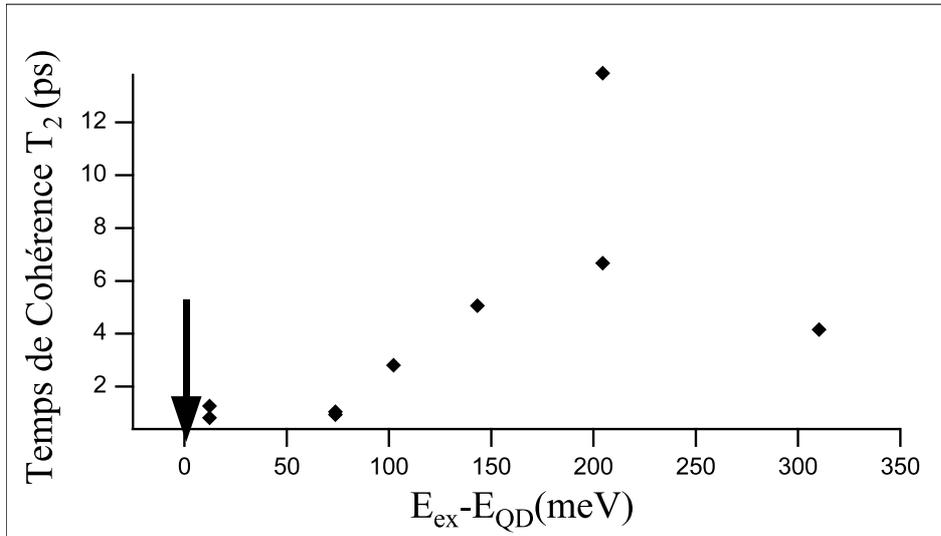


FIG. 6.4 – Influence de la longueur d'onde d'excitation d'une boîte quantique unique de CdSe dans ZnSe sur la largeur de raie d'émission excitonique.

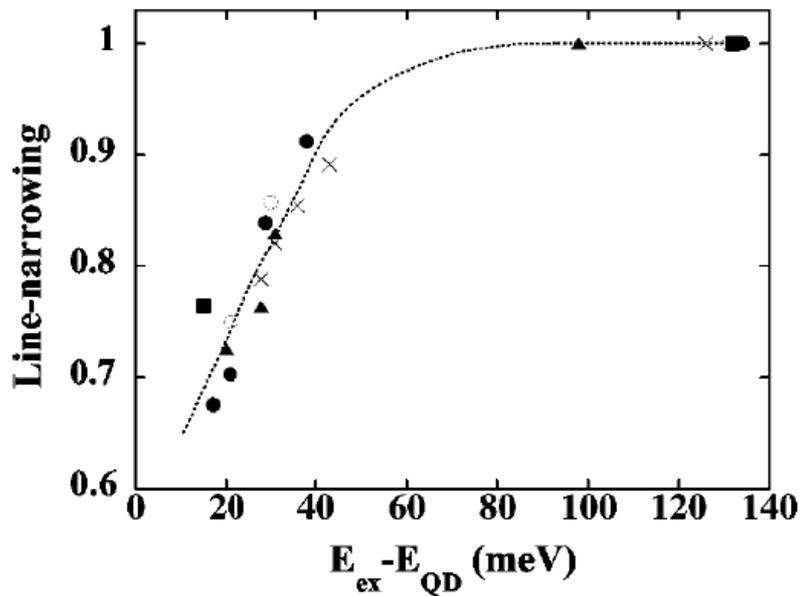


FIG. 6.5 – Influence de la longueur d'onde d'excitation d'une boîte quantique unique de InGaAs sur la largeur de raie d'émission excitonique. La largeur de raie est normalisée à l'énergie d'émission de l'exciton. D'après [4].

77 meV. Or nous avons vu dans la partie 6.1 précédente que les quasi-résonances sur un état excité ou une raie de phonon optique se trouvent typiquement à 25 – 30 meV donc entre ces 2 raies d'excitation. Il serait donc normal de ne pas s'attendre à des résultats à ces longueurs d'ondes d'excitation qui ne sont pas spécialement résonnantes, toutefois, un effet de rétrécissement devrait tout de même se faire sentir d'après [4], or il n'en est rien.

Nous n'avons pas de réponse claire à apporter à ce résultat. Toutefois, à nouveau, la cause pourrait être que l'échantillon de CdSe dans ZnSe est naturellement chargé. Même si nous observions un exciton neutre, la diffusion spectrale de celui-ci due à la présence de charges résiduelles dans l'échantillon pourrait être cause de cette observation. L'autre raison pourrait être que ce nous observons est en fait la partie rapide de la raie d'émission, donc la partie due aux phonons acoustiques. Dans les matériaux II-VI cette contribution a été démontré comme étant plus forte que dans des matériaux III-V [11]. Cela voudrait dire que pour véritablement observer la cohérence de la boîte quantique elle-même, il faut être capable de discriminer de faibles contraste. Notre 'résolution' en terme de contraste étant de seulement 10%, nous ne sommes peut-être pas assez précis. Il faudrait réduire la lumière parasite et intégrer plus longtemps pour pouvoir voir un contraste clair qui se détache du fond incohérent.

6.2 Excitation Résonnante à 2 Photons du Biexciton

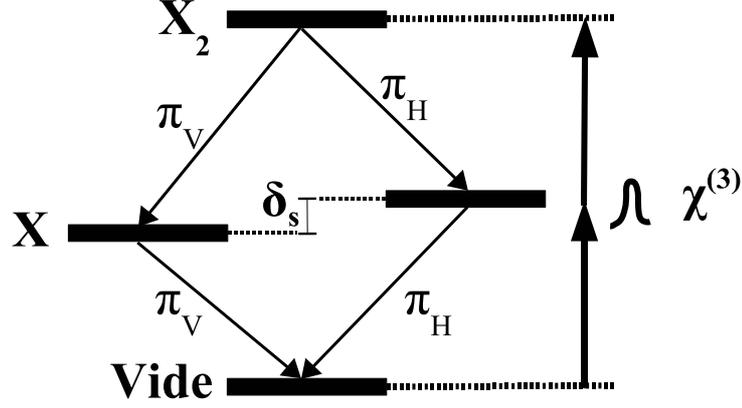
6.2.1 Création de l'Exciton et du Biexciton simultanément

Même si nous avons pu réaliser des mesures d'excitation de la photoluminescence sur une boîte unique, cela ne nous aurait donné accès qu'à des états quasi-résonnants de la BQ. Dans tout les cas (excitation à un phonon LO ou sur un état excité de la boîte) la condition de résonance stricte n'est pas satisfaite.

Nous avons dès lors envisagé 2 nouvelles approches, la première étant l'excitation résonnante de deux excitons dans une boîte par excitation visible à 2 photons. La Fig 6.6 représente à nouveau le schéma de désexcitation biexciton-exciton. Nous avons vu au chapitre 3, section 3.4.1, que l'écart entre X et X_2 pouvait atteindre jusqu'à 5 nm. A présent avec un laser impulsif en mode picoseconde avec des impulsions tout les 80 MHz, l'énergie par impulsion peut être importante. Pour une puissance moyenne de 100 mW, la puissance crête est de 1 – 2 kW ce qui est largement suffisant pour créer des effets non-linéaires d'absorption à 2 photons. On peut montrer après des calculs forts fastidieux que la probabilité d'absorption à 2 photons pour une transition d'un état $|i\rangle$ vers un état $|f\rangle$ est donné par [12] :

$$\varphi^{i \rightarrow f} = \frac{8\pi^3 |M_{fi}|^2}{\epsilon c^2 \hbar^2} I_\omega^2 \varrho(\hbar\Delta\omega) \quad (6.8)$$

Dans cette formule nous avons : ϵ la permittivité du milieu considéré, I_ω l'intensité du laser d'excitation à la pulsation ω et M_{fi} l'élément de matrice du second ordre reliant les transitions $|i\rangle$ à $|f\rangle$ entre elles. La fonction $\varrho(\hbar\Delta\omega)$ est elle donnée par :


 FIG. 6.6 – Schéma d'un système à 2 niveaux avec un niveau fondamental f et un niveau excité e .

$$\varrho(\hbar\Delta\omega) = \frac{\hbar\Gamma/\pi}{\hbar^2(\Delta\omega)^2 + \hbar^2\Gamma^2} \quad (6.9)$$

où $\Delta\omega = \omega_{fi} - 2\omega$ représente le désaccord en fréquence du laser d'excitation à 2 photons à ω et de la transition à ω_{fi} . Γ étant à nouveau la largeur de raie de l'émission qui nous intéresse.

On notera que le coefficient non-linéaire d'ordre 3 χ^3 est relié à cette probabilité par la relation :

$$\Im(\chi^3) = \pi|M_{fi}|^2 \varrho(\hbar\Delta\omega) (n_i - n_f) \quad (6.10)$$

avec $(n_i - n_f)$ la différence de population entre les états i et f .

D'après l'équation (6.8) on voit apparaître le fait que la probabilité est proportionnelle au carré de l'intensité d'excitation. Habituellement pour un exciton, nous avons vu que la dépendance est linéaire aux basses excitations. Cela nous procure un critère d'identification. Cette proportionnalité au carré montre bien que pour avoir cet effet non-linéaire, il faut beaucoup d'énergie par impulsion pour espérer voir le phénomène. A travers la fonction ϱ , on voit également apparaître un effet de résonance puisque si l'on satisfait la condition $\Delta\omega = \omega_{fi} - 2\omega = 0$ alors ϱ est maximisé et la probabilité d'absorption à 2 photons est alors aussi maximisée.

Enfin, on notera que l'élément de matrice du second ordre $|M_{if}|^2$ s'écrit :

$$M_{if} = \frac{1}{4} \sum_{i \neq j} \frac{W_{fj}W_{ji}}{E_i - E_j + \hbar\omega} \quad (6.11)$$

où W_{ji} est l'élément de matrice du passage de l'état i vers l'état intermédiaire j (l'état X dans notre cas) et W_{fj} est l'élément de matrice du passage de l'état intermédiaire j vers l'état final f (l'état X_2 dans ce cas). Il apparaît donc qu'une excitation à deux photons sera d'autant plus favorable que la probabilité de passer du niveau fondamental i au niveau

intermédiaire puis du niveau intermédiaire au niveau final f est grande. Autrement, dans le cas d'excitation résonnante de 2 excitons, l'élément de matrice est important puisqu'il s'appuie sur un niveau qui n'est pas virtuel mais qui est bien présent, c'est le niveau à un exciton. Nous verrons plus loin qu'il n'en est pas de même pour une excitation de l'exciton à 2 photons infrarouges car dans ce cas, le niveau intermédiaire est un niveau virtuel au milieu de la transition excitonique.

La figure 6.7 présente le spectre d'une raie excitonique et de son biexciton associé en excitation non-résonnante. Pour pouvoir exciter de façon résonnante et créer simultanément l'exciton et le biexciton par absorption non-linéaire de 2 photons d'excitation, il faut placer le laser entre l'émission de l'exciton et de son biexciton associé. Il faudra donc placer le laser à une énergie $E_X + \Delta_{X-X_2}/2$. C'est ce qui est représenté sur la figure 6.7. Cette figure montre également le spectre de la même boîte présentant les mêmes raies d'émission à 517.4 nm pour X et à 521.9 nm pour X_2 mais cette fois-ci en excitation résonnante à 2 photons avec le laser placé à 519.65 nm . La présence des 2 raies est un premier signe que l'on crée simultanément X et X_2 . De plus, en changeant légèrement la longueur d'onde d'excitation, les 2 raies disparaissent brutalement et en même temps.

De plus, comme nous l'avons déjà suggéré plus haut, pour s'assurer que nous avons bien affaire à une absorption à deux photons, on peut regarder l'évolution de l'intensité des 2 raies créées en fonction de la puissance du laser d'excitation. Cette dépendance doit être quadratique comme nous l'avons vu. La Fig 6.8 présente cette évolution. La courbe en traits pleins représente une évolution purement quadratique en fonction de la puissance d'excitation. L'évolution de l'exciton est donnée par la courbe avec marqueurs ronds et l'évolution du biexciton est donnée par la courbe avec marqueurs carrés. L'évolution n'est pas franchement quadratique (évolution quadratique en traits pleins) et il n'est pas clair qu'elle soit linéaire non plus (évolution linéaire en traits pointillés). Toutefois, les évolutions de X et de X_2 sont identiques suggérant qu'elles ont bien été créées en même temps dans la boîte.

Pour finir, on n'oubliera pas de préciser que ces mesures ont été effectuées avec un filtrage supplémentaire i.e. un réseau couplé à un petit masque (voir chapitre 4, partie 4.7 pour une description plus complète de ce montage). Sur la figure 6.7 on voit tout de même apparaître le laser toujours présent entre les 2 raies excitoniques. Lors de la visualisation sur la caméra CCD, il faut donc regarder aux pieds de la raie laser résiduelle pour voir les raies X et X_2 . On notera que cette expérience a déjà été réalisée par Flissikowski et al. [2] sur des boîtes quantiques CdSe/ZnSe tout comme nous. Nous reviendrons sur leur expérience et leurs résultats dans la partie qui suit.

6.2.2 Résultats sur la Cohérence

Intéressons-nous à présent à la longueur de cohérence des raies excitoniques sous une telle excitation. En particulier, nous avons mesuré la longueur de cohérence du biexciton (donc la raie à 521.9 nm). En effet, Zwiller et al. [5] ont montré que le temps de cohérence était plus long pour X_2 que pour X , d'où la raison de notre choix sur le biexciton.

La figure 6.9 présente le résultat du contraste en fonction du retard d'un bras de l'interféromètre. L'ajustement par une fonction exponentielle décroissante nous donne une

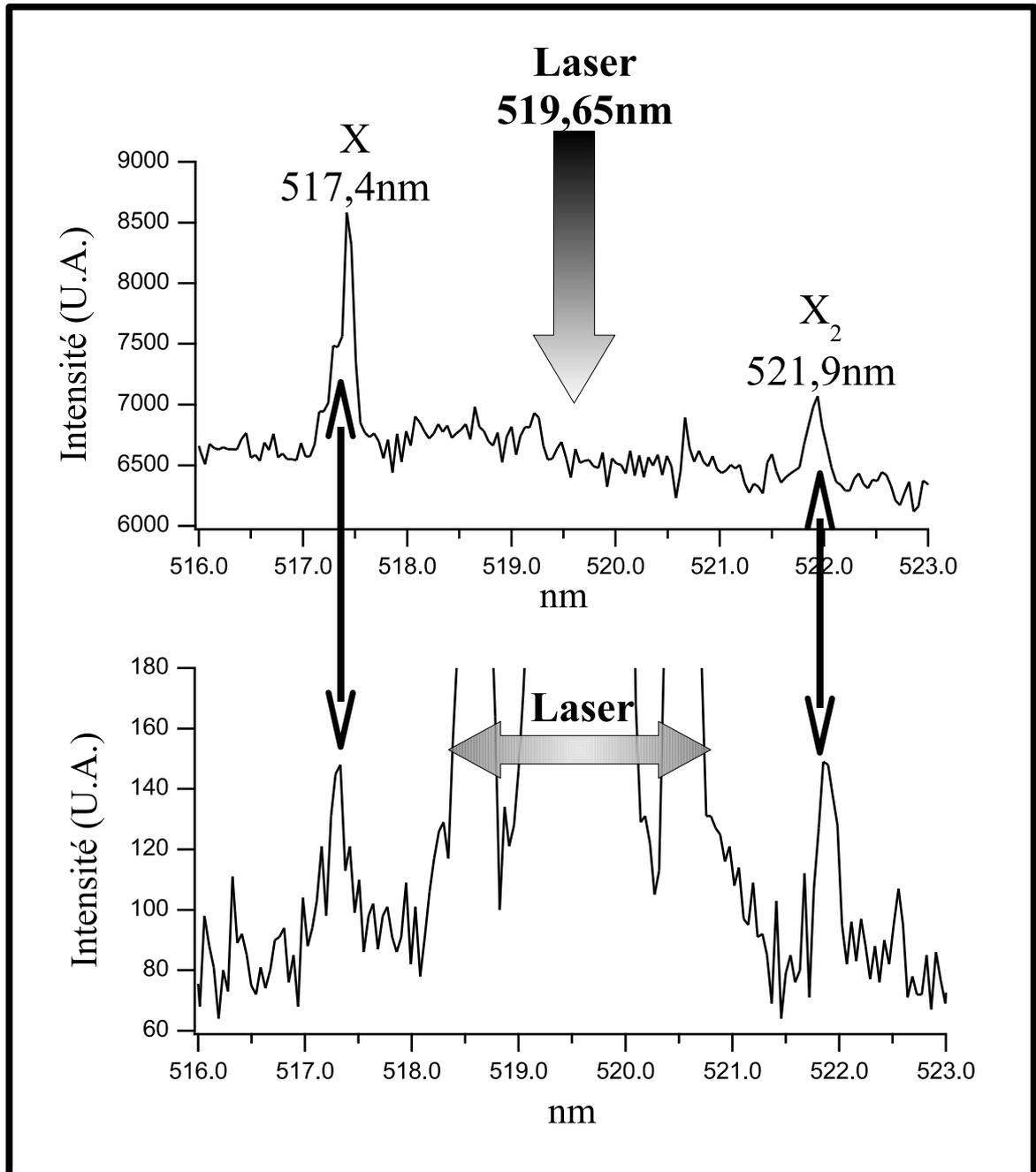


FIG. 6.7 – La figure du haut présente le spectre d'une raie excitonique et de son biexciton associé en excitation non-résonnante. Le milieu de l'écart $X - X_2$ est représenté par une flèche signifiant quelle devrait être la longueur d'onde du laser d'excitation. la figure du bas présente le même spectre avec les 2 mêmes raies mais en excitation résonnante à 2 photons. La trace du laser est encore visible entre les 2 raies de la boîte quantique.

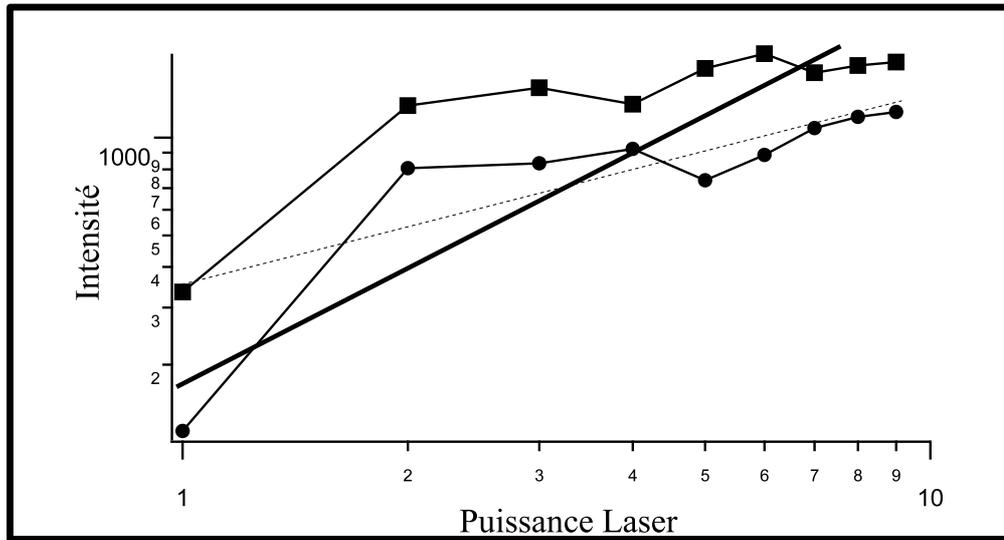


FIG. 6.8 – Evolution de l'intensité de l'exciton et du biexciton en fonction de la puissance laser d'excitation. La courbe en traits pleins représente une évolution purement quadratique. La courbe en traits pointillés représente une évolution purement linéaire.

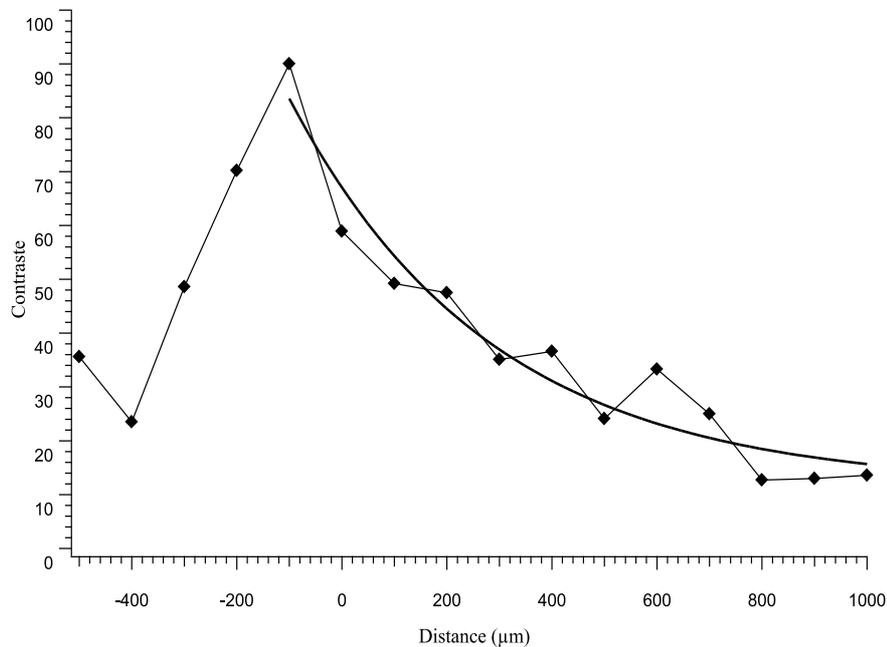


FIG. 6.9 – Contraste de la raie biexcitonique d'une boîte quantique CdSe dans ZnSe en excitation résonnante à 2 photons.

valeur de $383 \mu m$ donc un temps de cohérence de $1.3 ps$ ce qui est probablement le temps le plus court que nous ayons trouvé. A nouveau, cela est en contradiction avec ce que l'on aurait attendu pour une telle excitation qui par définition est strictement résonnante. En fait, Flissikowski et al. [2] ont trouvé également un temps de cohérence plutôt court de l'ordre de $12 ps$ en utilisant également un échantillon de boîte quantique de CdSe dans ZnSe. Cela est certes un ordre de grandeur de mieux que dans notre situation, mais cela est tout de même loin des $2T_1 = 400 - 500 ps$ attendu pour une cohérence parfaite. Ces temps caractéristiques ne sont pas des constantes propres aux matériaux II-VI et en particulier aux boîtes quantiques CdSe dans ZnSe puisque d'autres auteurs ont mesuré un temps de cohérence de $380 ps$ dans de telles boîtes en utilisant des techniques de hole burning spectral [1]. Pour expliquer leur temps court, Flissikowski et al. évoquent un élargissement inhomogène dynamique des niveaux d'énergies. Il serait dû aux fluctuations de charges dans l'environnement de la BQ. Sur des temps d'acquisitions assez longs de l'ordre d'une heure, de telles fluctuations ont le temps de se produire. Besombes et al. ont montré dans un échantillon dopé que des sauts importants pouvant aller jusqu'à $2 meV$ peuvent apparaître sur des périodes de 10 à $20 s$. Les échantillons que nous étudions ainsi que ceux de Flissikowski et al. [2] sont eux aussi naturellement dopés comme nous avons déjà mentionné auparavant. Bien que dans notre cas il ne faut pas s'attendre à de tels écarts en énergie, il est certain que ces charges résiduelles doivent influencer les raies excitoniques des boîtes.

Furdyna et collaborateurs [1] prétendent que par leur technique de mesure de largeur de raie par une mesure de pompe-sonde sur hole burning spectral, ils ne sont pas sujets à ces fluctuations mais seulement à la contribution des phonons. C'est la raison pour laquelle ils peuvent voir une largeur pratiquement de l'ordre du temps de vie contrairement à Flissikowski et collaborateurs qui sont obligés d'intégrer sur des temps longs par spectroscopie de Fourier.

On notera que Palinginis et al. montrent que le rapport de poids spectral dans les boîtes CdSe entre la raie excitonique seule et l'élargissement dû aux phonons acoustiques est de $1/100$ alors que ce même rapport est de 1 dans le cas de BQs InGaAs. Cela confirme donc bien aussi un couplage électron-phonon acoustique bien plus important dans les boîtes quantiques de CdSe.

6.3 Excitation à 2 Photons Infrarouges

6.3.1 Description de l'Absorption à 2 Photons de l'Exciton

Les réflexions sur la meilleure façon d'exciter de façon résonnante une boîte quantique nous ont donné l'idée d'envoyer directement la longueur d'onde fondamentale infrarouge du laser impulsionnel pour exciter les boîtes quantiques. De cette façon, nous avons l'espoir d'avoir de l'absorption à 2 photons infrarouges de l'exciton seul puis réémission des boîtes quantiques dans le visible. Par ce type d'excitation, il est alors très facile de filtrer la lumière excitatrice de la lumière de fluorescence (plus besoin de montage lourd supplé-

mentaire avec réseau externe, masque et cube polariseur). Tout comme l'absorption à 2 photons visibles, le laser fournissant des impulsions aussi courtes que $1 - 2 ps$, la puissance crête par impulsion est suffisante pour espérer avoir de l'absorption à 2 photons. Qualitativement, les relations de la section 6.2.1 reste valable dans le cas de l'absorption à 2 photons infrarouges cette fois-ci ; mis à part le fait, déjà mentionné, que cette fois-ci, il n'y a pas de niveau intermédiaire existant entre le niveau excitonique et l'état du vide.

Par contre, nous devons à présent faire attention à un autre facteur : la conservation du moment cinétique. En effet, dans le cas où l'absorption de 2 photons visibles provoque l'émission de 2 photons visibles (X et X_2), la conservation du moment est préservé puisque : $1 \pm 1 \rightarrow 1 \pm 1$. Par contre dans le cas de figure où 2 photons infrarouges donnent 1 photon visible, on a : $1 \pm 1 \rightarrow 1$. La conservation du moment cinétique traduit en fait une règle de sélection pour avoir une transition autorisée ou interdite. Dans ce cas précis, on peut conclure que la création d'un exciton brillant ($J = 1$ cf. chapitre 3) par excitation à deux photons identiques n'est pas possible. Par contre, on peut envisager de créer un exciton noir qui, lui, possède un moment cinétique égal à 2.

C'est l'approche qu'ont envisagée Snoke et al. [15] sur des boîtes quantiques InP. Utilisant un oscillateur paramétrique optique (OPO) pompé par un laser Titane-Saphire à $1375 nm$, ils ont regardé la fluorescence d'un ensemble de boîtes émettant autour de $690 nm$. Le but de cette expérience était d'étudier le retournement de spin de l'exciton. En effet, le problème lorsque l'on crée un exciton noir, c'est que celui-ci n'émet pas de lumière sauf dans le cas où il y a retournement du spin. Dans ce cas là, l'exciton devient optiquement actif à nouveau. Par cette méthode, les auteurs espéraient trouver le temps caractéristique de ce retournement. Snoke et collaborateurs s'étonnent d'ailleurs de trouver un temps extrêmement court de $200 ps$, très loin des $10 - 100 ns$ que l'on peut habituellement trouver dans la littérature. Toutefois, ces résultats sont forts contestables puisque les auteurs observent la fluorescence d'un grand nombre de boîtes quantiques et non d'une boîte unique. Il n'est donc pas évident de tirer des conclusions dans ce cas.

6.3.2 Principe du Pompage Optique sur Exciton Chargé

Au départ nous envisagions cette expérience dans un but similaire à celui de Snoke et al. mais sur des boîtes quantiques uniques. L'échantillon qui était en notre possession au moment de l'expérience était un échantillon de BQs de CdSe dans ZnSe mais avec cette fois-ci une majorité de boîtes chargées (des trions, voir chapitre 3). Par des mesures magnéto-optiques à nouveau, il est apparu qu'à plus de 95% les raies excitoniques étaient en fait des trions.

Toutefois nous pouvions observer un effet intéressant avec des boîtes chargées : le pompage optique de spin. Nous allons à présent décrire en détails le raisonnement aboutissant à cette conclusion. Appuyons-nous sur la figure 6.10 pour mieux comprendre. Supposons qu'au départ, avant excitation optique, il y a présence d'un électron (ces matériaux étant naturellement dopés p) dans la boîte. Cet électron peut avoir un spin $+1/2$ (représenté par une flèche \uparrow) ou $-1/2$ (représenté par une flèche \downarrow). Le niveau de l'électron est représenté par un trait plein noir et le niveau du trou est représenté par un trait vide.

L'idée est alors la suivante. Si l'électron déjà présent dans la boîte a un spin $+1/2$ et que l'on envoie 2 photons infrarouges en excitation σ^+ alors d'après le principe d'exclusion de Pauli, la boîte ne va pas absorber les 2 photons infrarouges (car un électron de même spin serait créé dans la boîte). L'électron dans la boîte reste inchangé et conserve donc son spin $+1/2$. Par opposition, si l'électron déjà présent dans la boîte a un spin $-1/2$ alors la boîte va pouvoir absorber les 2 photons infrarouges. Dans ce cas, on se retrouve avec un trou de spin $+3/2$ et deux électrons de spins opposés. Cet état va se recombiner avec l'électron de spin tel que l'exciton puisse émettre un photon (la combinaison $+3/2 + -1/2 = 1$ étant la seule permise optiquement). Dès lors, l'électron restant dans la boîte est à nouveau un électron de spin $+1/2$. Pour conclure, cela veut dire qu'en excitation σ^+ l'électron qui reste dans la boîte est toujours de spin $+1/2$. Réciproquement, en polarisation σ^- , l'électron qui reste dans la boîte est toujours de spin $-1/2$. Ceci est le principe du pompage optique de spin.

Pour conclure sur ce point, il faut préciser qu'être capable de pomper optiquement avec une probabilité de, en théorie 100%, est un challenge et un sujet de recherche très actif de l'électronique de spin, encore appelé spintronique. Expérimentalement, pour observer cet effet, on peut s'attendre à voir une extinction de la fluorescence de la boîte en fonction de l'état de polarisation du laser excitateur. En effet, d'après ce que nous venons de décrire, pour une polarisation circulaire donnée, la boîte quantique ne doit plus émettre de lumière puisqu'il y a eu pompage du niveau et donc la boîte devient transparente au laser.

6.3.3 Premiers Résultats sur Boîtes Quantiques Uniques

Résultats de Spectroscopie

Avant de nous intéresser à l'excitation de boîtes uniques ou à un possible effet de pompage optique de spin sur un trion, nous avons commencé par exciter un ensemble de boîtes dans un méso de $10 \mu m$ de côté. Pour ces mesures, nous avons utilisé le laser Titane-Saphir impulsif à des longueurs d'ondes variant de 1000 à 1070 nm . Les puissances étaient pratiquement les puissances maximales donc de l'ordre de plusieurs dizaines de mW voir quelques centaines parfois. Enfin, pour éviter un quelconque effet de pompage optique, la polarisation du laser d'excitation était linéaire à 45° par rapport aux axes de la boîte. De cette façon, nous avons une superposition de polarisations circulaires σ^+ et σ^- .

La figure 6.11 présente la fluorescence d'un ensemble de boîtes quantiques CdSe dans ZnSe par excitation à 2 photons infrarouges. Deux choses sont frappantes sur cette figure. La première est la présence d'un pic bien plus prononcé que les autres au-dessus de la distribution inhomogène de boîtes. On pourrait se dire que cela est exactement l'effet recherché et que l'on a là un effet résonnant d'une seule boîte (ou d'un petit nombre) entre les 2 photons excitateurs et la transition excitonique. Le pic est exactement à $\lambda_{laser}/2$. Toutefois, lorsque l'on se place à côté d'une méso, donc un endroit vide de BQs, le pic est toujours présent. Ce pic est en fait le doublage du substrat de GaAs. En principe, GaAs possède de très forts coefficients non-linéaires mais c'est un matériau centrosymétrique. Il n'y a donc pas de doublage non-linéaire de fréquence dans de tels matériaux. Toutefois à fortes puissances, des distortions locales peuvent causer une asymétrie, un effet

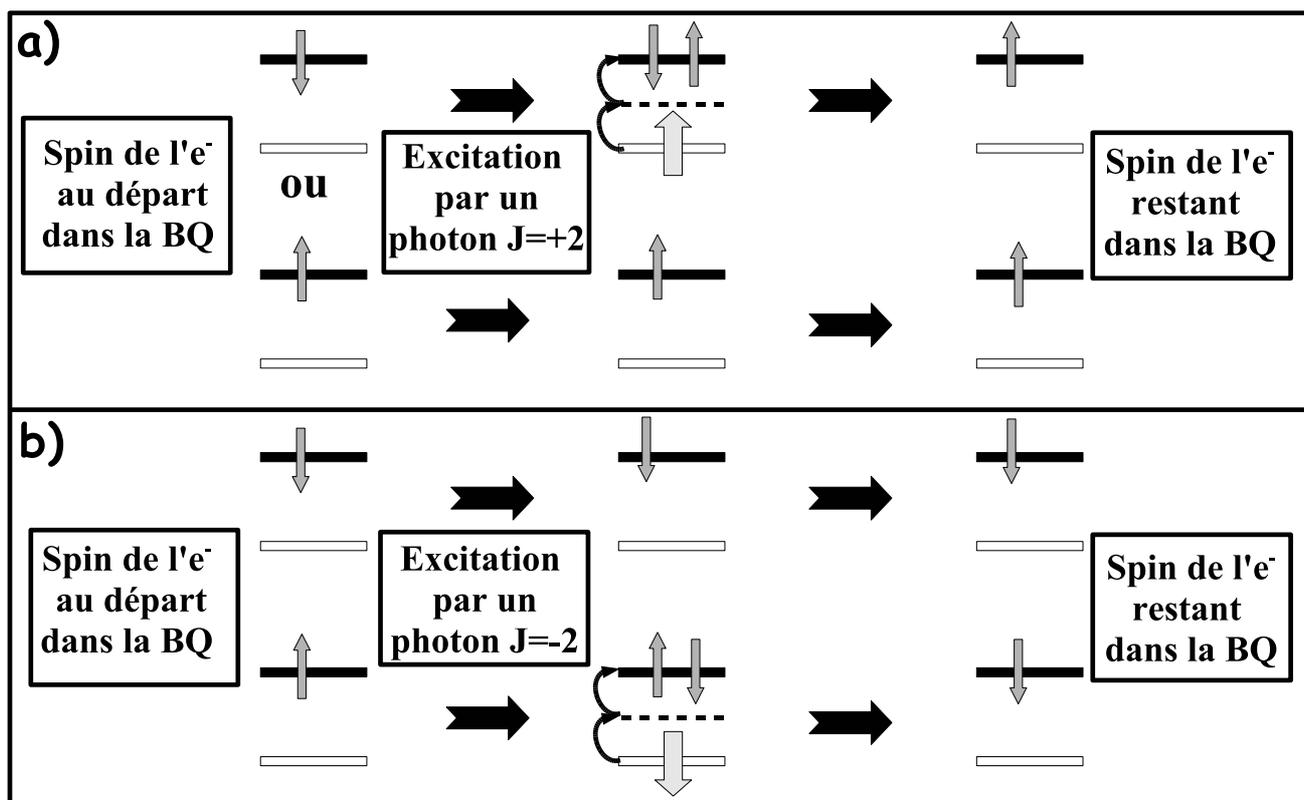


FIG. 6.10 – Principe du pompage optique de spin de l'électron dans une boîte chargée naturellement à un électron.

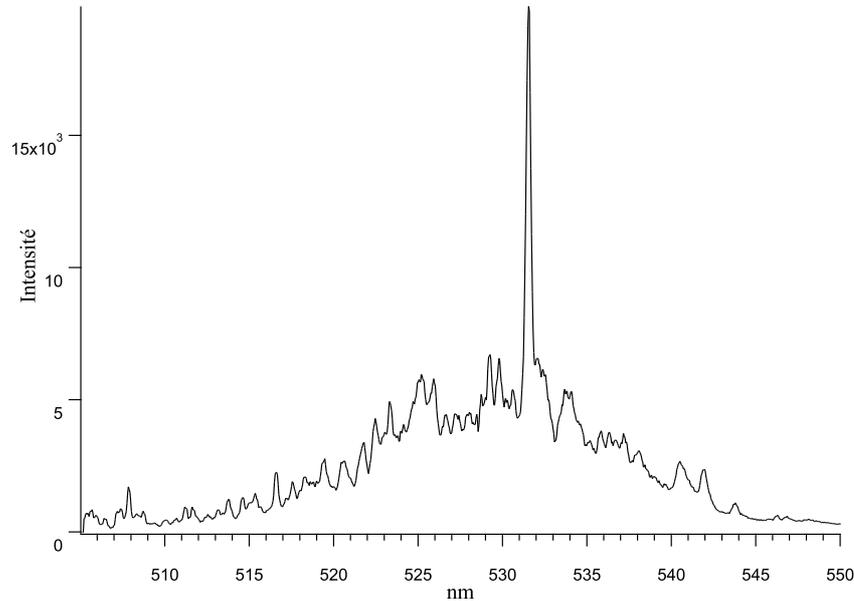


FIG. 6.11 – Excitation à 2 photons infrarouges d'un échantillon de boîtes quantiques de CdSe dans ZnSe. La raie principale est le doublage direct des matériaux (plan de boîtes+substrat) et non un effet de résonnance.

non-linéaire et du doublage de fréquences peut alors se produire. En fait, des expériences ont montré qu'une succession bien choisie de couches de matériaux centrosymétriques (comme GaAs) peut donner lieu à un effet de doublage extrêmement efficace [16]. A nouveau, cela est dû à une brisure de la symétrie à la surface de l'échantillon épitaxié.

D'après nos observations, le pic est essentiellement dû au substrat, toutefois, sur des mésas, les fines couches épitaxiées de CdSe et ZnSe (tous deux aussi centrosymétriques et avec de forts coefficients non-linéaires) contribuent également à ce doublage. Ce phénomène s'avérera gênant pour la suite surtout lorsque l'on veut voir si l'on a un phénomène résonnant. Tout l'intérêt d'exciter à 2 photons infrarouge est, entre autre, de ne pas avoir de problèmes de filtrage du laser excitateur. Cet effet non-linéaire est une autre façon d'avoir finalement le même problème. Nous reviendrons sur ce point plus tard en particulier pour montrer comment se débarrasser de ce problème.

La deuxième observation troublante est que l'on observe de la fluorescence à droite du pic laser (luminescence dite Stokes classique à plus basse énergie) mais aussi à gauche du pic laser (luminescence dite anti-Stokes à plus haute énergie). Cette luminescence anti-Stokes a déjà été observée par le passé mais dans des conditions différentes. Dans tous les cas, l'effet a été observé avec une excitation à un photon seulement. Dans [15], pour la première fois, il a été trouvée cette fluorescence anti-Stokes mais seulement dans la couche de mouillage des boîtes quantiques. Les auteurs indiquent que les boîtes quantiques servaient à favoriser la fluorescence mais qu'elles n'émettaient pas elles même. L'émission

anti-Stokes de boîtes quantiques uniques a pour la première fois été observée par Kammerer et al. [17]. Sans équivoque possible, les BQs de InAs dans GaAs émettent de la lumière à plus haute énergie que le laser exciteur. Les auteurs avancent deux raisons potentielles à cet effet mais sans vraiment être capables d'en prouver aucune.

La première raison serait un phénomène d'effet Auger ou un processus d'absorption à 2 photons à deux étapes. Pour l'effet Auger, 2 paires électron-trou sont créés sur un niveau en résonance avec l'excitation. Grâce à l'énergie coulombienne d'interaction entre ces 2 paires, l'une d'elle va se recombiner non-radiativement alors que l'autre va être envoyée sur un niveau d'énergie plus élevé avant elle de se recombiner éventuellement radiativement.

Pour le deuxième effet, l'idée est que un exciton est d'abord créé sur un niveau de durée de vie longue par un premier photon laser puis l'exciton absorbe un autre photon laser exciteur. Dans les 2 cas, les phénomènes sont non-linéaires mais il est difficile de discriminer l'un par rapport à l'autre.

Dans notre situation, l'absorption ne peut être que celle à au moins 2 photons infrarouges. La question suivante est de savoir si nous pouvons toujours observer cet effet sur des boîtes uniques, si la luminescence anti-Stokes est toujours présente et si elle n'était pas due à un effet collectif multiexcitonique ou de transfert entre BQs à cause de la forte concentration de boîtes dans une méso de $10\mu m$. La Fig 6.12-a)-b)-c)-d) présente les spectres de différents mésas submicroniques. L'échelle des ordonnées est logarithmique pour pouvoir mieux voir les raies d'émissions. En effet, dans tout le cas le doublage du laser est présent et généralement 100 à 1000 fois plus importants que les raies uniques de boîtes quantiques. On peut voir qu'il y a toute sorte de possibilité. De plusieurs dizaines de raies comme pour la fig 6.12-a) a seulement 3 ou 4 raies pour b), c) et d). Pour la figure 6.12-a) on peut voir que la fluorescence anti-Stokes est bien présente. En fait, elle est toujours présente comme nous allons le voir dans la suite.

A présent, il est intéressant de comparer un spectre pris en excitation à 2 photons infrarouges avec un spectre pris en excitation visible à un photon. Pour cela, nous allons nous intéresser en détails au méso de la figure 6.12-d). La figure 6.13 montre à nouveau le spectre à deux photons de ce méso (avec cette fois-ci la luminescence anti-Stokes présente clairement comme promis) ainsi que le spectre d'excitation de cette même méso pour une excitation haute énergie à $457.8 nm$.

Sur cette figure, on peut voir un pic qui ressort distinctement du spectre, le doublage du substrat et des BQs toujours présent dans les échantillons mésas. On peut également voir des similitudes entre les 2 spectres. Certaines raies sont présentes dans les 2 spectres comme les raies 1, 2, 5, 7 et 8 alors que d'autres ne sont présentes que pour l'excitation visible comme les raies 3,4 et 6. On remarquera également que des écarts en longueurs d'ondes sont observés pour les raies 1,2 et 8. L'écart varie de 0.4 à $0.6 nm$. L'écart peut se produire vers les basses énergies comme les raies 1 et 2 mais aussi vers les hautes énergies comme la raie 8. On notera également que la largeur de raie de chaque pic est préservée. Elle est en fait donnée par la résolution du spectromètre comme dans le cas de l'excitation visible. Il n'y aurait donc aucun élargissement des raies supplémentaire dû à ce mode d'excitation. Toutefois, étant limité par la résolution spectrale de notre montage, nous ne savons pas si nous avons en fait l'effet inverse que l'on aimerait d'un rétrécissement des

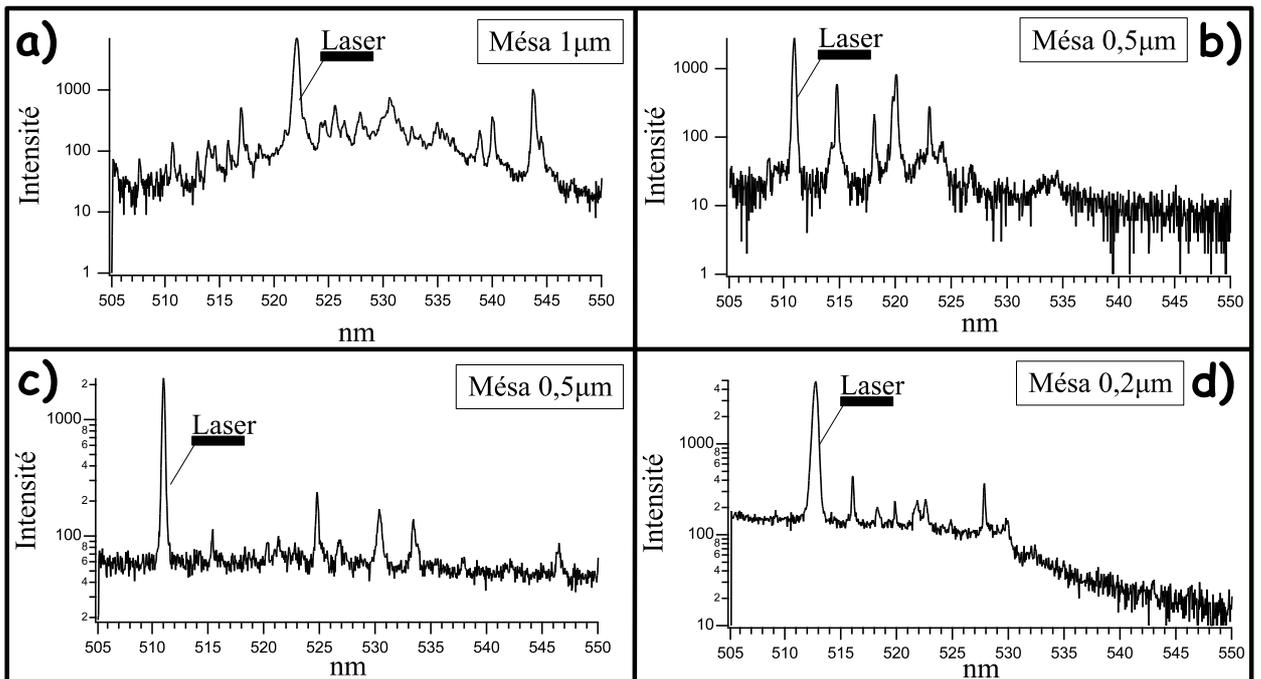


FIG. 6.12 – Divers spectres de fluorescence en excitation infrarouge à deux photons avec différentes concentrations de boîtes quantiques pour des mésas de tailles submicrométriques.

raies d'émissions. Pour cela, des mesures de longueurs de cohérence seraient nécessaires mais nous n'avons pas pu effectuer de telles mesures.

Etudes en Fonction de la Puissance

Après la simple spectroscopie, une expérience intéressante consiste à voir l'évolution des boîtes quantiques excitées à 2 photons infrarouge en fonction de la puissance d'excitation du laser. La Fig 6.14 montre une telle évolution pour un méso de 200 nm de côté avec une excitation laser à 1036 nm donc avec un doublage du substrat vers 518 nm . Tout comme avec une excitation standard, peu de raies apparaissent à basse excitation puis le nombre augmente avec la puissance d'excitation jusqu'à ce que le spectre soit pratiquement rempli de raies d'émissions.

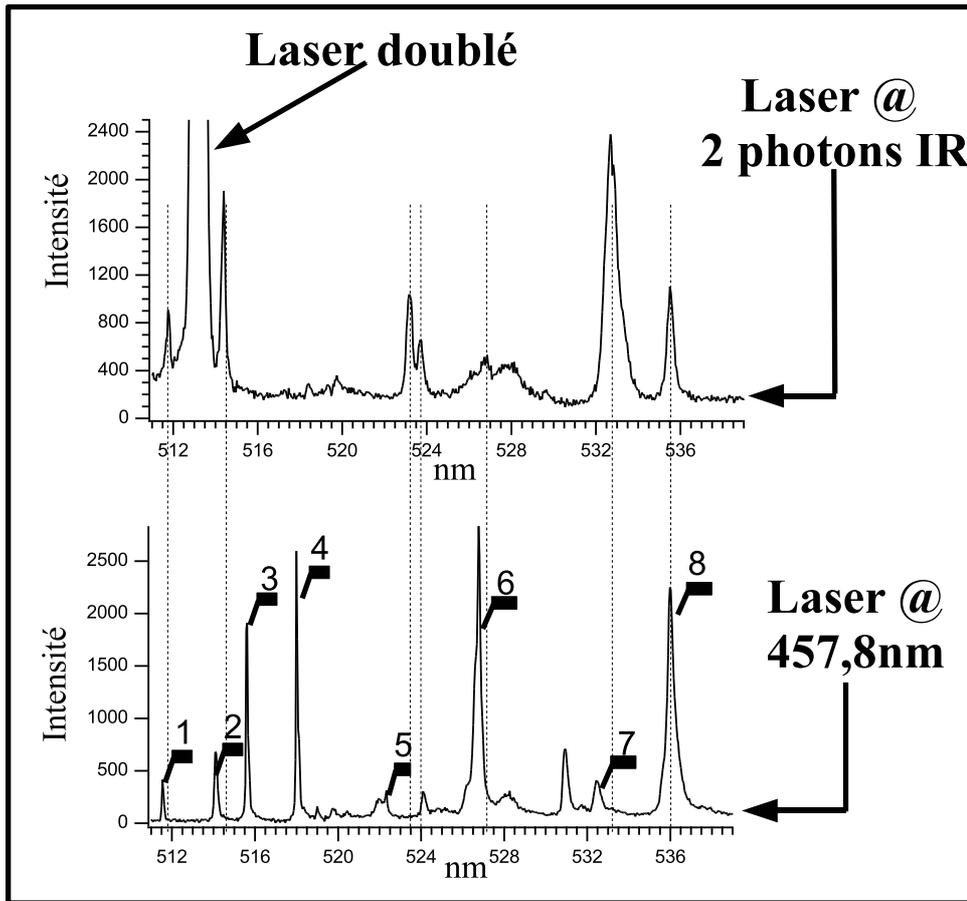


FIG. 6.13 – Comparaison du spectre d'émission d'un méso de côté de 200 nm en excitation à 457.8 nm et en excitation à 2 photons infrarouges à 1026.4 nm.

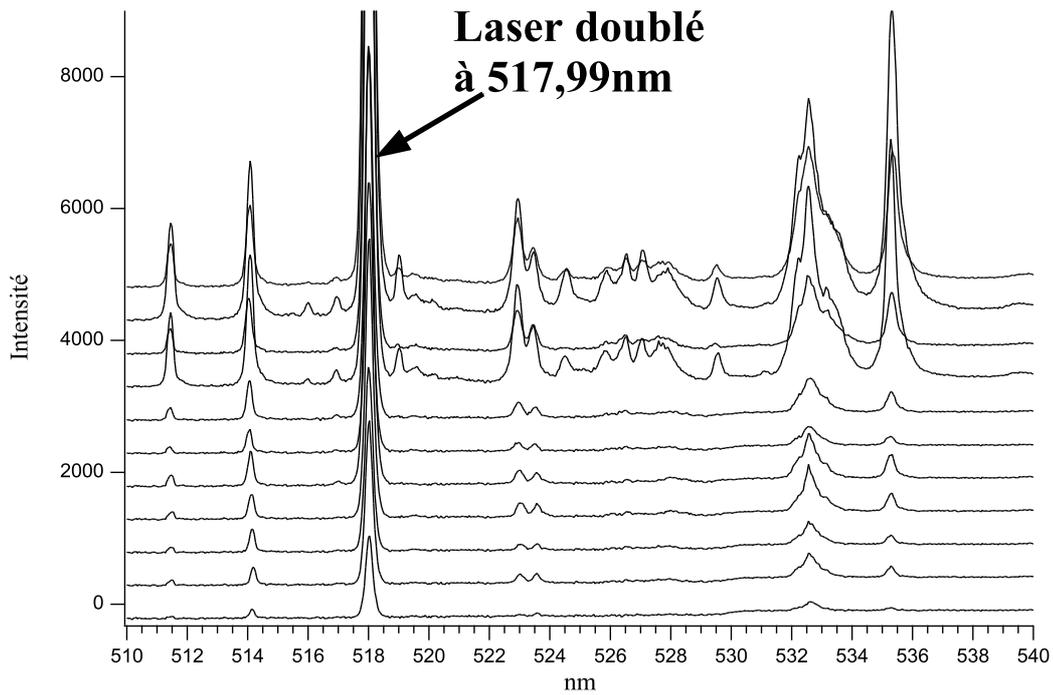


FIG. 6.14 – Evolution de l'intensité des boîtes quantiques d'une ouverture de 200 nm de côté en fonction de la puissance d'excitation infrarouge à 1036 nm .

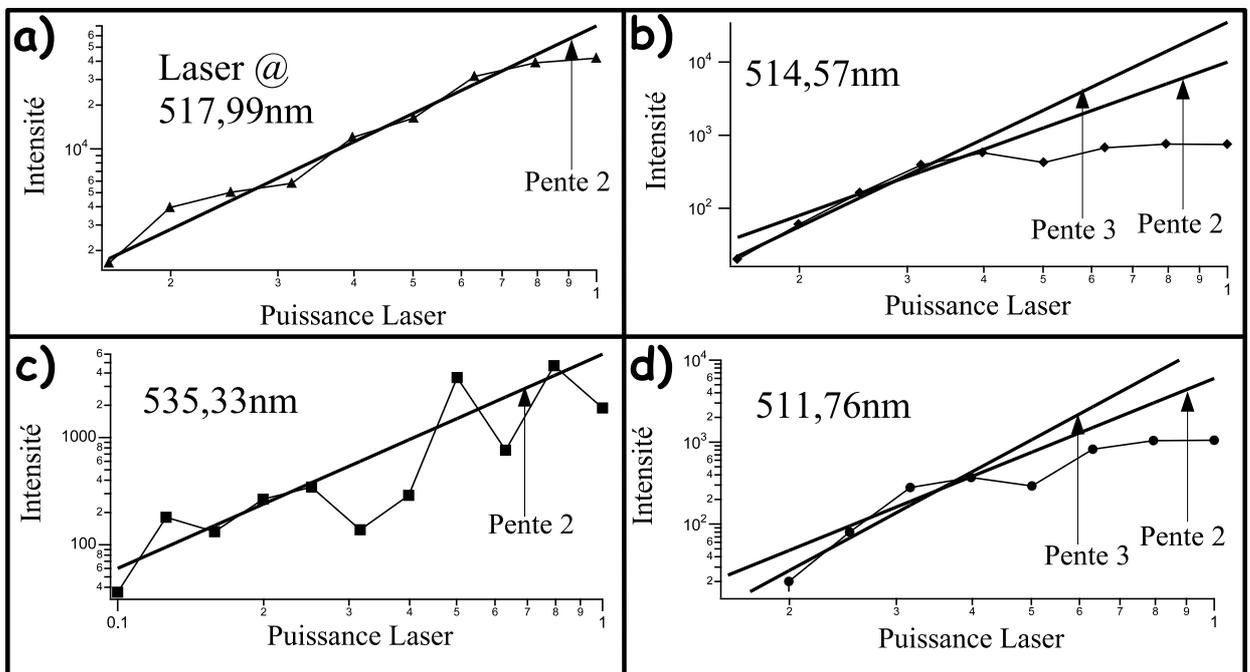


FIG. 6.15 – a) Courbe d'évolution de l'intensité du doublage du substrat due au laser en fonction de l'excitation laser. b)-c)-d) Courbes d'évolutions de quelques raies excitoniques en fonction de l'excitation laser.

La Fig 6.15 présente une étude quantitative de cette évolution en fonction de la puissance en échelle log-log. La Fig 6.15-a) présente l'évolution de la fluorescence de doublage qui, comme on peut s'y attendre, dépend quadratiquement avec la puissance du laser. Pour la fluorescence des BQs proprement dite, les évolutions varient beaucoup d'une boîte à l'autre. Toutefois, il apparaît que lorsque l'on se trouve à haute énergie de la fluorescence du laser doublé (émission anti-Stokes) le comportement est sur-quadratique et avec observation d'une saturation. C'est le cas de la figure 6.15-b) et de la figure 6.15-d) qui présentent l'évolution de la raie respectivement à 514.57 nm et à 511.76 nm superposés à des ajustements à la puissance deux et trois (courbes en traits pleins). Il est évident que le comportement n'est pas linéaire mais il n'est pas non plus quadratique mais sur-quadratique. Une absorption multiphotoniques à 3 photons ou plus serait l'explication de l'observation de l'émission anti-Stokes. Pour corroborer ce résultat, il faut s'assurer que le comportement des raies à droite de la fluorescence du laser doublé (émission Stokes classique cette fois) est bien lui quadratique. C'est ce que montre la figure 6.15-c) pour la raie d'émission à 535.33 nm . Cela dit, la figure 6.15-d) ne présente pas elle de saturation. Il n'est pas évident de savoir comment interpréter cette différence qualitative de comportement avec la puissance laser selon que l'on regarde de l'émission Stokes ou de l'émission anti-Stokes.

Etudes en Fonction de l'Energie d'Excitation

Pour terminer, la dernière étude que nous avons faites est celle de l'évolution des raies d'émission en fonction de l'énergie d'excitation laser (à 2 photons). Cela consiste en quelque sorte à une excitation à 2 photons de la photoluminescence dont nous avons déjà parlé dans la partie 6.1 précédente.

L'idée est la suivante : lorsque l'on balaie le laser d'excitation et que l'on passe sur une transition excitonique, un effet résonnant doit être observé. Cela se traduirait par une augmentation de la luminescence à la longueur d'onde de la transition considérée. Dans notre cas, la situation est un peu plus complexe dans le sens où nous avons toujours la contribution de lumière doublée par le substrat à la même longueur d'onde que la BQ que l'on veut exciter en résonance. Il faut donc espérer voir une augmentation du signal doublé dû à l'effet résonnant de la boîte.

La Fig 6.16 présente une superposition de plusieurs balayages en longueur d'onde de l'échantillon. On peut y voir l'évolution du signal doublé vers les hautes longueurs d'ondes qui témoigne de la véritable évolution du laser exciteur. Nous avons ensuite regardé l'évolution de l'intensité de l'émission à 514.3 nm en fonction de la longueur d'onde d'excitation. Nous nous sommes assuré pour cela de garder la puissance moyenne d'excitation constante ou si non, d'en tenir compte.

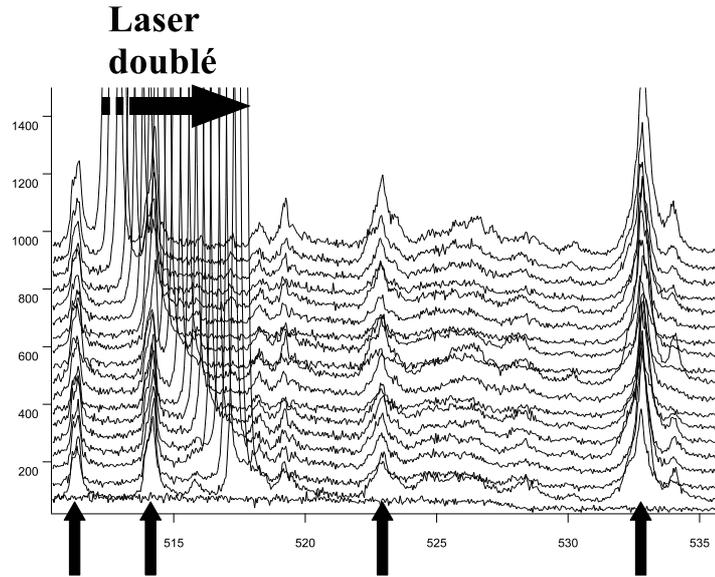


FIG. 6.16 – Evolution du spectre de boîtes quantiques dans un méso de 200 nm de côté en fonction de la longueur d'onde d'excitation du laser.

La figure 6.17 présente une telle évolution pour 4 raies excitoniques du spectre d'un méso de 200 nm de côté. Dans ce cas, seule l'émission à 514.3 nm subit le passage du laser. Pour cette courbe, la droite en traits pleins représente la valeur moyenne et la double flèche représente l'incertitude sur la mesure. A différence de longueur d'onde nulle n'apparaît aucun phénomène résonnant. Les fluctuations de cette courbe d'évolution ne peuvent pas être interprétées comme étant l'observation d'un véritable phénomène physique. Il n'a donc pas été possible de voir un effet résonnant sur une telle expérience. De même que pour les autres raies, il n'est pas évident de voir des phénomènes résonnants. Même si un point semble ressortir sur toutes les courbes, il peut être assimilé à un changement de puissance du laser d'excitation affectant toutes les raies du spectre.

6.3.4 Difficultés Rencontrées

Les expériences que nous avons décrites précédemment ont été extrêmement difficiles à faire. En effet, outre les problèmes de travailler à 2 longueurs d'ondes complètement extrêmes (vers 1050 nm infrarouge et vers 525 nm visible) d'autres problèmes sont apparus durant les expériences. D'abord la première chose est l'apparition du doublage de fréquence du laser dû au substrat et au plan de BQs. Comme nous l'avons déjà mentionné, cela est gênant dans le sens où cela 'cache' l'éventuel phénomène résonnant mais aussi dans tous les cas l'émission simple de la boîte quantique qui se trouve en dessous. Toutefois, nous avons effectué quelques expériences de ce type sur un échantillon masqué et l'émission de doublage n'est alors pas présente ou très peu c'est à dire de l'ordre de l'émission des boîtes et non pas 10 ou 50 fois plus intense comme dans le cas des expériences avec mésas que nous avons décrite dans la partie précédente.

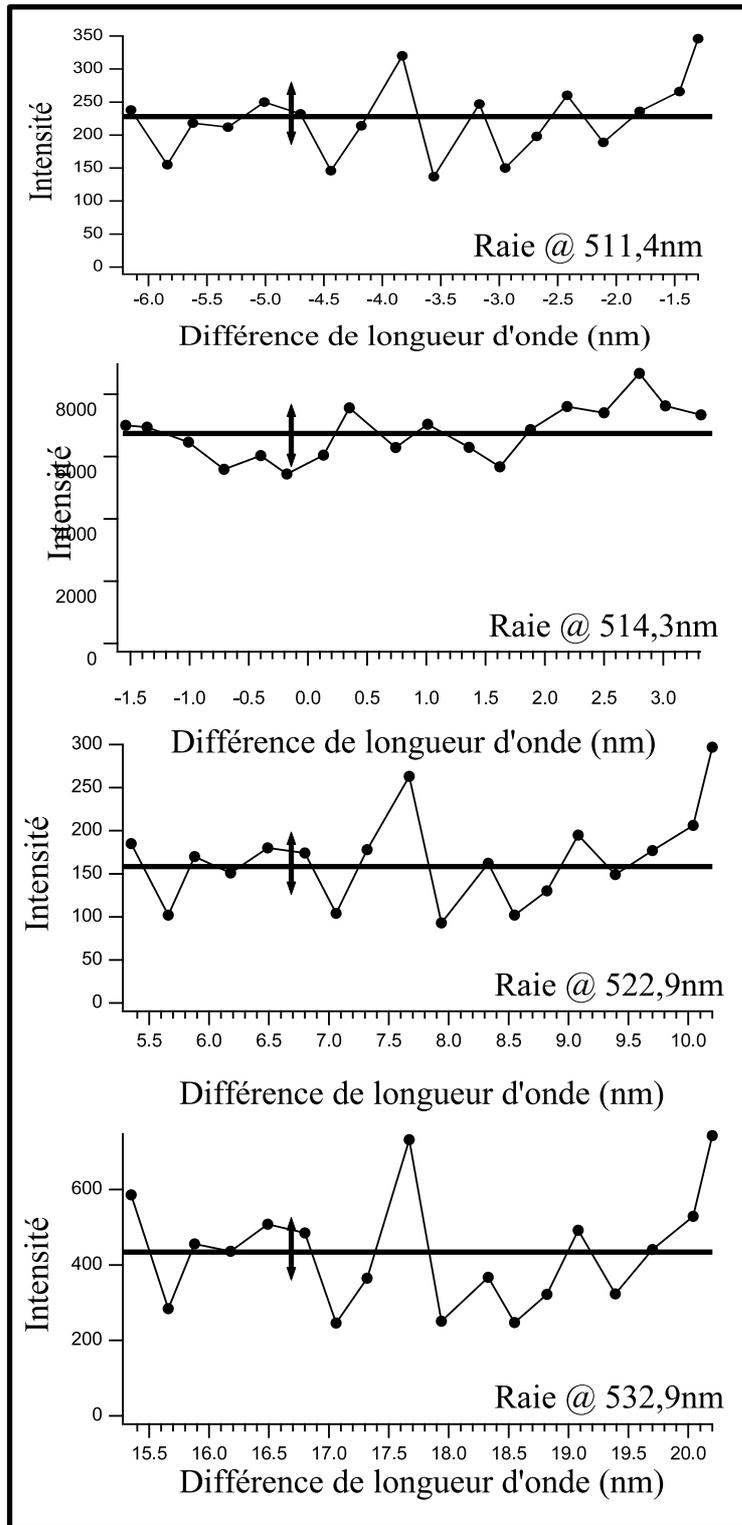


FIG. 6.17 – Courbes d'évolutions de l'intensité d'une boîte quantique à 511.4 nm, 514.3 nm, 522.9 nm et 532.9 nm en fonction de la longueur d'onde d'excitation.

Dans ce cas, une autre complication apparaît c'est le problème de l'efficacité d'excitation et de collection. En effet, l'absorption à 2 photons étant un phénomène non-linéaire, l'influence de la focalisation du laser exciteur sur l'échantillon est très importante. En retouchant la focalisation du microscope, on passe très vite d'une absence de signal à beaucoup de signal. Du fait de l'aberration chromatique du microscope, les focales de l'excitation et de la collection ne sont pas les mêmes. Travailler alors avec un échantillon masqué devient difficile car le point n'est plus si bien défini (à cause de la taille submicro-métrique). Il devient alors très difficile de trouver un juste milieu entre excitation efficace et collection efficace.

De plus, durant la plupart de nos mesures, de grandes fluctuations d'intensité (de 2 à 10 fois le signal moyen) sont observées sur des échelles de l'ordre de quelques secondes. Les fluctuations du laser d'excitation ont été incriminées mais elles ne sont que de l'ordre de quelques pourcents pour le fondamental. Même le carré de ces valeurs ne peut expliquer de telles fluctuations. La raison de telles fluctuations n'est pas toujours très claire. Un changement local d'environnement (dû à un échauffement de l'échantillon par exemple) pourrait être la cause de telles fluctuations.

Pour conclure, on peut espérer que telles expériences d'absorption à 2 photons soient très prometteuses mais il nous est aussi apparu flagrant que le contrôle sur les conditions expérimentales doit être total : pas de dérives mécaniques avec le temps (pour ne pas changer la focale!), pas de dérives dues à la température (pour la même raison) ou encore un contrôle parfait de la forme des impulsions laser (pour être sûr de se placer dans les mêmes conditions expérimentales). Comme nous l'avons vu, il faut également trouver une solution pour supprimer ce doublage résiduel du substrat (qui reste le contributeur majeur). Pour cela, on pourrait imaginer d'essayer d'autres substrats ou tout simplement de supprimer le substrat après épitaxie du plan de boîtes quantiques.

6.4 Conclusions sur les Expériences de ce Chapitre

Comme nous l'avons déjà signalé dans ce chapitre, les résultats un peu contradictoire sur les longueurs de cohérence de boîtes quantiques uniques nous incitent à penser que le montage expérimental doit être amélioré pour pouvoir mesurer avec précision le temps T_2 d'une boîte unique. Si la présence de la composante due aux phonons acoustiques est certaine alors nous devrions être capable de le mesurer. Encore une fois, les mesures de cohérence doivent être faites en faisant varier différents paramètres tel que la température mais aussi l'énergie d'excitation. Pour cela, une vraie mesure d'excitation de la photoluminescence (ou PLE, voir chapitre 6, partie 6.1.2) doit être faite pour pouvoir exciter à un endroit bien déterminé au-dessus de l'émission de la boîte (à un phonon LO, sur un état excité).

Enfin, ce type de mesure de temps de cohérence doit être effectué sur une raie excitonique créée par excitation à 2 photons infrarouge. Il est certain que l'influence sur la valeur de T_2 en excitation à 2 photons infrarouge doit se faire sentir lorsque l'on fait

varier la longueur d'onde d'excitation. Toutefois, comme nous l'avons vu dans la partie 6.3.2, l'expérience la plus intéressante semble être celle du pompage optique de spin sur le trion en excitation à 2 photons infrarouge. On connaît toute l'importance du pompage optique dans l'optique moderne. Ce phénomène d'inversion de populations suggéré par Alfred Kastler en 1950 déjà [18], est au coeur de l'effet laser et nul-doute qu'une inversion de population de spins électroniques par voie optique serait d'une grande importance notamment dans la physique de l'électronique de spin. Bien évidemment, si il y a une chose que nous avons démontré dans nos premières expériences, c'est que la route est encore longue d'ici là.

Bibliographie

- [1] *Physique Atomique*.
B. Cagnac, et J.C. Pebay-Peyroula, Eds Dunod, (1977).
- [2] *Mécanique Quantique*.
C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, et F. Laloë, Eds Hermann Science, (2000).
- [3] *Excitonic Absorption in a Quantum Dot*.
P. Hawrylak, G.A. Narvaez, M. Bayer, et A. Forchel, Phys. Rev. Lett. **85**, 389 (2000).
- [4] *Line narrowing in single semiconductor quantum dots : Toward the control of environment effects*.
C. Kammerer, C. Voisi, G. Cassabois, C. Delalande, Ph. Roussignol, F. Klopff, J.P. Reithmaier, A. Forchel, et J.M. Gérard, Phys. Rev. B **66**, 41306 (2002).
- [5] *Single-photon Fourier Spectroscopy of excitons and biexcitons in single quantum dots*.
V. Zwiller, T. Aichele, et O. Benson, Appl. Phys. Lett. **69**, 165307 (2004).
- [6] *Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots*.
P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R.L. Sellin, D. Ouyang, et D. Bimberg, Phys. Rev. Lett. **87**, 157401 (2001).
- [7] *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*.
D. Birkedal, K. Leosson, et J.M. Hvam, Phys. Rev. Lett. **87**, 227401 (2001).
- [8] *Long Lived Coherence in Self-Assembled Quantum Dots*.
D. Gammon, E.S. Snow, B.V. Shanabrook, D.S. Katzer, et D. Park, Science **273**, 87 (1996).
- [9] *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs self-assembled quantum dots*.
M. Bayer, et A. Forchel, Phys. Rev. B **65**, 41308 (2002).
- [10] *Detection and Generation of Non-Classical Light States from Single Quantum Emitters*.
T. Aichele, Thèse de Doctorat de l'Université Humboldt de Berlin, (2004).
- [11] *Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission*.
L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, Phys. Rev. B **63**, 155307 (2001).
- [12] *The Principles of Nonlinear Optics*.
Y.R. Shen, Eds Wiley-Interscience, (1984).
- [13] *Two-Photon Coherent Control of a Single Quantum Dot*.
T. Flissikowski, A. Betke, I.A. Akimov, et F. Henneberger, Phys. Rev. Lett. **92**, 227401 (2004).

- [14] *Exciton dephasing in self-assembled CdSe quantum dots.*
P. Palinginis, H. Wang, S.V. Goupalov, D.S. Citrin, M. Dobrowolska, et J.K. Furdyna,
Phys. Rev. B **70**, 73302 (2004).
- [15] *Spin flip from dark to bright states in InP quantum dots.*
D.W. Snoke, J. Hübner, W.W. Rühle, et M. Zundel, Phys. Rev. B **70**, 115329 (2004).
- [16] *Phase-matching using an isotropic nonlinear optical material.*
A. Fiore, V. Berger, E. Rosencher, P. Bravetti, et J. Nagle, Nature **391**, 463 (1998).
- [17] *Photoluminescence Up-Conversion in Single Self-Assembled InAs/GaAs Quantum Dots.*
C. Kammerer, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, et J.M. Gérard,
Phys. Rev. Lett. **87**, 207401 (2001).
- [18] *Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique de l'in-
égalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Applications
à l'expérience de Stern et Gerlach.*
A. Kastler, J. Phys. Rad. **11**, 255 (1950).

Chapitre 7

Conclusions et Perspectives

Sommaire

7.1	Boîtes Quantiques II-VI en Microcavités	184
7.1.1	Nécessité de l'Effet Purcell	184
7.1.2	Premiers Résultats	186
7.2	Perspectives d'Expériences	190
7.2.1	Améliorations Techniques	190
7.2.2	Effet Hong-Ou-Mandel avec des Boîtes Quantiques II-VI	191
7.2.3	Protocole de Génération d'Intrication en Temps-Energie	193
7.3	Conclusion Générale	193

Epitomé

Pour terminer ce manuscrit, nous allons développer dans ce dernier chapitre les conclusions et perspectives attendues à la suite de ce travail de thèse. Nous présenterons d'abord les premiers résultats de boîtes quantiques II-VI en microcavités avec miroirs d'oxydes. Nous tenterons d'expliquer les résultats préliminaires et nous insisterons sur l'importance de l'effet Purcell d'augmentation du taux d'émission spontanée pour les expériences que nous avons décrites dans cette thèse. Par la suite, nous donnerons des perspectives, nous insisterons notamment sur le fait que notre montage devrait être plus modulable et devrait s'adapter à toute sorte de BQs que l'on pourrait étudier et non pas simplement les boîtes de composés émettant dans le visible. Nous parlerons également du travail qui reste à faire pour pouvoir réaliser expérimentalement la proposition de Knill, Laflamme et Milburn (KLM) dont nous avons déjà parlé. La première étape est bien sûr de réaliser l'expérience de coalescence de photons. Enfin, avant de donner une conclusion générale, nous parlerons d'une proposition de notre équipe qui consiste à créer de l'enchevêtrement en temps-énergie à l'aide de la cascade biexciton-exciton.

7.1 Boîtes Quantiques II-VI en Microcavités

7.1.1 Nécessité de l'Effet Purcell

Nous avons vu dans le chapitre 6 que les longueurs de cohérences observées étaient loin d'être celle attendues. Plusieurs raisons ont été avancées pour cela, notamment des limitations expérimentales de notre montage mais aussi peut être des limitations physiques. Pour les premières, quelque chose peut être fait notamment sur la précision des mesures de franges et donc des mesures de contraste. Pour les dernières, Palinginis et al. ont montré pour les boîtes quantiques II-VI que la largeur homogène (i.e. 380 ps) des BQs étaient assez proche de la valeur théorique [1]. D'un autre côté, Flissikowski et al. n'ont pas réussi à obtenir plus que 12 ps comme temps de cohérence pour un système similaire [2]. Qui croire dans ce cas ? Qui est l'exception ? Les techniques de mesures effectuées étant différentes, quelles sont les conditions expérimentales optimales à choisir ? Il semble à peu près bien établi dans les boîtes faites de matériaux III-V que les temps de cohérences sont tous les mêmes, en tout cas du même ordre de grandeur. Il semble que pour les matériaux II-VI, la présence de charges éventuelles peut beaucoup varier d'un échantillon à l'autre. Nous avons pu expérimenter ce fait sur 2 échantillons différents, l'un pour lequel à plus de 95% les boîtes étaient chargées et l'autre qu'il l'était à 50%. De plus, si le problème est dans le temps d'intégration total, alors cela veut dire que toute mesure qui serait trop longue dans le temps (disons supérieure à 1 min, qui est le temps typique observé pour les dérives dues aux fluctuations de charges [3] et voir chapitre 6) serait vouée à l'échec car les fluctuations de charges seraient trop importantes. Cela expliquerait pourquoi toute mesure directe de spectre (mesure de la largeur homogène par haute résolution spectrale [4] ou par hole-burning spectral [1]) est bien plus efficace, avec des temps de mesure < 1 min, que toute mesure indirecte par spectroscopie de Fourier (voir nos résultats et [2]), avec des temps de mesure $\gg 1$ min.

Une autre approche, dont nous avons déjà parlé, consiste à diminuer le temps de vie radiatif d'une transition plutôt que de "rallonger" (par exemple en contrôlant l'énergie d'excitation) le temps de cohérence. Le but dans les 2 cas est bien entendu de se rapprocher de la condition $T_2 = 2T_1$. En reprenant le formalisme du chapitre 2 où nous avons tenté de décrire la théorie quantique de la lumière, nous allons décrire l'effet Purcell de réduction du temps de vie radiatif [5]. Dans la section 2.1 du chapitre 2, nous avons vu que le champ électromagnétique dans une boîte ou une cavité est quantifié. Nous avons pris ensuite la limite d'une cavité infinie pour avoir tous les modes quantiques du champ électromagnétique. Toutefois, rien ne nous empêche de considérer ce qui se passera si l'on considère que l'on observe seulement une boîte de taille finie. La densité de mode autour d'une résonance sera plus élevée, ce qui augmentera la probabilité d'émissions spontanée d'une boîte en résonance avec la cavité. On peut montrer que le facteur de Purcell du taux d'émission spontanée est donnée par :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q\lambda^3}{Vn^3} \quad (7.1)$$

où $Q = \lambda/\Delta\lambda$ est le facteur de qualité donné par le rapport de la longueur d'onde λ par la largeur du mode optique de la cavité $\Delta\lambda$ à la longueur d'onde λ . V représente le volume de la cavité et n l'indice du milieu. Ce facteur traduit le rapport du taux d'émission spontanée dans l'espace libre T_1^0 avec le taux d'émission spontanée dans la cavité T_1^c : $F_p = T_1^0/T_1^c$.

Cette approche a été tout d'abord celle des groupes de recherche de physique atomique (pour un passage en revue des expériences, voir Haroche et Kleppner [6]). Ce domaine est appelé l'électrodynamique quantique en cavité. Les premières expériences ont été faite dans les années 60 et se poursuivent de nos jours notamment à Paris dans le groupe de Serge Haroche (voir par exemple [7]), Munich dans le groupe de Rempe [8] et Caltech dans le groupe de Kimble [9] pour ne citer qu'eux. Les résultats les plus significatifs ayant été obtenus dans les 10 dernières années avec l'observation d'oscillations de Rabi [10], d'enchevêtrement atome/photon [11] ou encore l'émission de photons uniques comme nous l'avons déjà mentionné auparavant (voir chapitre 2, section 2.2.1). Avec l'amélioration des techniques d'épitaxies, il est apparu très vite que l'on pourrait insérer des boîtes quantiques dans des microcavités épitaxiés [12, 13]. Ces microcavités faites de miroirs de Bragg peuvent prendre différentes formes : en forme de piliers [12], de microdisques [14] ou très récemment de cristaux photoniques [15]. Dans tout les cas, l'idée est toujours la même de modifier l'environnement spatial de l'émetteur et donc de modifier son taux d'émission spontanée. Les records de facteur de Purcell jusqu'à présent sont de 150 [14]. Il est à noter que toutes les expériences avec des BQs insérées en cavités ont été faites avec des matériaux III-V. Dans toutes ces expériences décrites, tout est entièrement épitaxié, les miroirs de Bragg de la cavité autant que le plan de boîtes.

Pour les boîtes quantiques II-VI, il est beaucoup plus difficile de faire des miroirs de Bragg. D'abord parce que les techniques d'épitaxies ne sont pas aussi bonnes que pour les III-V, ensuite parce qu'il y est difficile de trouver une paire de matériaux qui peuvent se superposer sans causer de défauts ou de dislocation (pratiquement il est difficile de trouver deux matériaux avec des paramètres de maille identiques) et enfin parce que les

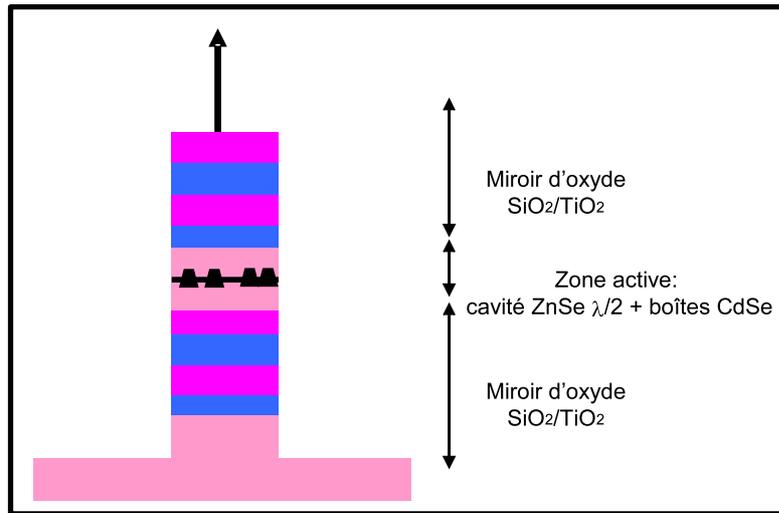


FIG. 7.1 – Schéma d'un micropilier dont les miroirs de Bragg sont faits de TiO₂/SiO₂ avec insertion de boîtes quantiques CdSe/ZnSe au centre de la cavité formée. D'après [17].

couches des miroirs doivent être moins épaisse puisque la longueur d'onde est plus courte. Pour toutes ces raisons, les miroirs de Bragg des boîtes quantiques II-VI sont formés à partir d'oxydes. La Fig 7.1 montre un schéma d'un micropilier d'oxyde avec insertion de boîtes quantiques au centre de la cavité formée. Les miroirs de Bragg du haut et du bas sont de TiO₂/SiO₂ et les boîtes sont faites de CdSe dans ZnSe insérées dans une cavité $\lambda/2$ de ZnSe [17].

7.1.2 Premiers Résultats

La technique de fabrication de micropiliers II-VI est toujours en cours de développement dans l'équipe même si toutefois, des premiers résultats ont été obtenus. Une thèse sur ce sujet vient de s'achever, celle de Ivan-Christophe Robin qui a travaillé sur l'épitaxie des boîtes quantiques de CdSe, que nous avons utilisé pour la plupart des travaux de cette thèse, et la formation de miroirs de Bragg pour BQs II-VI. La figure 7.2-a) montre une série de micropiliers placés selon un schéma prédéfini et dont les diamètres sont variables, l'échelle étant visible en bas de l'image.

La Fig 7.2-b) montre une image d'un micropilier de $0.9 \mu m$ de diamètre nominal, dont la structure est exactement celle décrite dans la figure 7.1 précédente. A nouveau, l'échelle de taille est visible au bas de l'image. Ces images ont été prise à l'aide d'un microscope électronique à balayage. On notera que les diamètres accessibles par lithographie peuvent varier de $0.9 \mu m$ à $6 \mu m$. Plus le pilier est large plus il est facile de le lithographier. On notera également qu'à la vue de la formule de Purcell (7.1), un compromis doit être trouvé entre volume de mode V le plus petit possible et facteur de qualité Q le plus grand possible. Des piliers le plus petit possible ne sont pas forcément une solution à un meilleur facteur de Purcell car dans le cas d'un diamètre trop petit, les modes optiques ont tendance à "sortir" du micropilier et à dégrader le facteur Q [18].

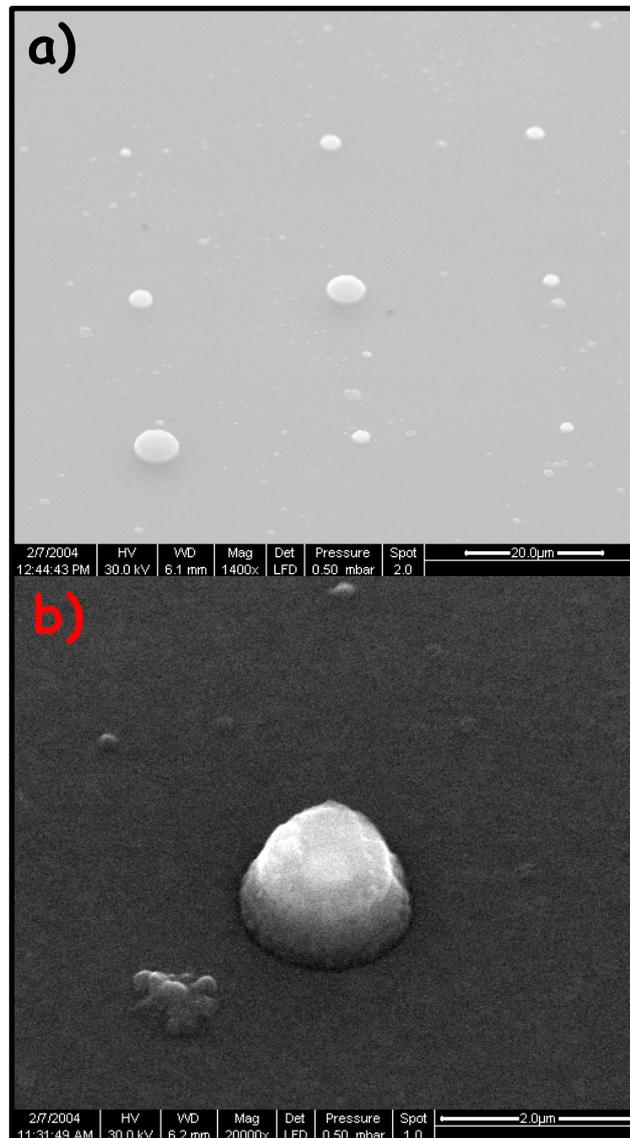


FIG. 7.2 – a) Série de micropiliers de diamètre variables placés selon un schéma prédéfini. b) Image d'un micropilier de $0.9 \mu\text{m}$ de diamètre nominal, dont la structure est celle décrite par la figure 7.1.

Des premiers résultats de caractérisations optiques et dynamique ont pu montrer qu'il y avait une relativement bonne identification des modes de cavités du micropilier même si quelques modes inconnus, non-identifiés sont toujours présents [19]. Sur des diamètres de piliers relativement grands (de 1 à 1.6 μm), des raies d'émissions intenses et relativement bien isolées (en tout cas assez pour être discriminées sur notre montage) ont pu être observées. Des mesures de temps de vie ont été faites sur ces raies d'émissions. A ces mesures, couplées à des mesures de largeurs de modes, Robin et al. [19] ont démontré un facteur d'exaltation du taux d'émission spontané F de 3.3. Ce facteur d'exaltation F est un facteur de Purcell effectif, relié au facteur de Purcell idéal (7.1) par la relation :

$$F = F_p + \gamma \quad (7.2)$$

où $\gamma.T_1^0$ est la fraction d'émission spontanée dans les modes de fuites puisque la cavité optique réalisée n'est jamais parfaite et possède des modes de fuites possibles pour les photons. Les auteurs ont pu mesurer des temps de vie en cavité T_1^c de certaines boîtes quantiques pouvant aller jusqu'à 77 ps à comparer aux 300 ps du temps de vie d'une boîte sans cavité. On est tout de même loin des meilleurs facteurs d'exaltation existants à l'heure actuelle [20]. Toutefois, ce résultat est le premier en la matière et on peut estimer que pour une première fois, les résultats sont encourageants. Au moment de l'écriture de ce manuscrit, des échantillons pensés comme étant meilleurs (facteur d'exaltation d'au moins 6) sont déjà sur le point d'être observés optiquement.

Avec ce premier échantillon, nous avons pu sur notre montage effectué des mesures d'autocorrélation sur raie unique comme décrites dans le chapitre 5. La figure 7.3-a) présente le spectre d'un micropilier de 1.6 μm de diamètre pour une puissance P_0 et la Fig 7.3-b) pour une puissance $50P_0$. A $50P_0$, nous avons basculé notre montage en mode autocorrélation et obtenu une courbe de dégroupement de photons en Fig 7.3-c). Le résultat ne tranche pas sur l'unicité de la source (creux d'antibunching au-dessus de 50%, voir chapitre 2 partie 2.1.3). De plus, nous n'avons pas effectué de mesures de saturation sur la raie en question et nous ne pouvons pas savoir où nous nous plaçons sur la courbe de saturation. Du reste, aucune mesure de saturation n'a jamais été effectuée sur cet échantillon ce qui est très dommageable. En effet, une réduction du taux d'émission spontané devrait conduire à une augmentation du seuil de saturation (temps de vie plus court implique plus de photons émis par la transition donc une saturation à plus forte puissance).

Ces premiers résultats sont tout de même prometteurs et doivent être poursuivis en détails avec le nouvel échantillon présenté comme étant meilleur comme nous l'avons déjà souligné. Les taux de comptage pour effectuer la mesure d'autocorrélation étaient 65.000 cps (avec un fond de 2200 cps dans les mêmes conditions à côté de la raie) et de 115.000 cps (avec un fond de 1800 cps). Le pixel temporel était de 12.2 ps et la durée totale d'acquisition T de seulement 60 s . Cela est à contraster avec les heures d'expériences effectuées dans les résultats du chapitre 5. Les taux de comptage dans cette situation sont 10 à 15 fois plus importants que lors des expériences sur BQs sans cavités du chapitre 5. On voit donc sur ces chiffres tout l'intérêt d'utiliser des microcavités qui en plus de réduire le taux d'émission spontanée (donc d'augmenter le nombre de photons émis par l'émetteur) va

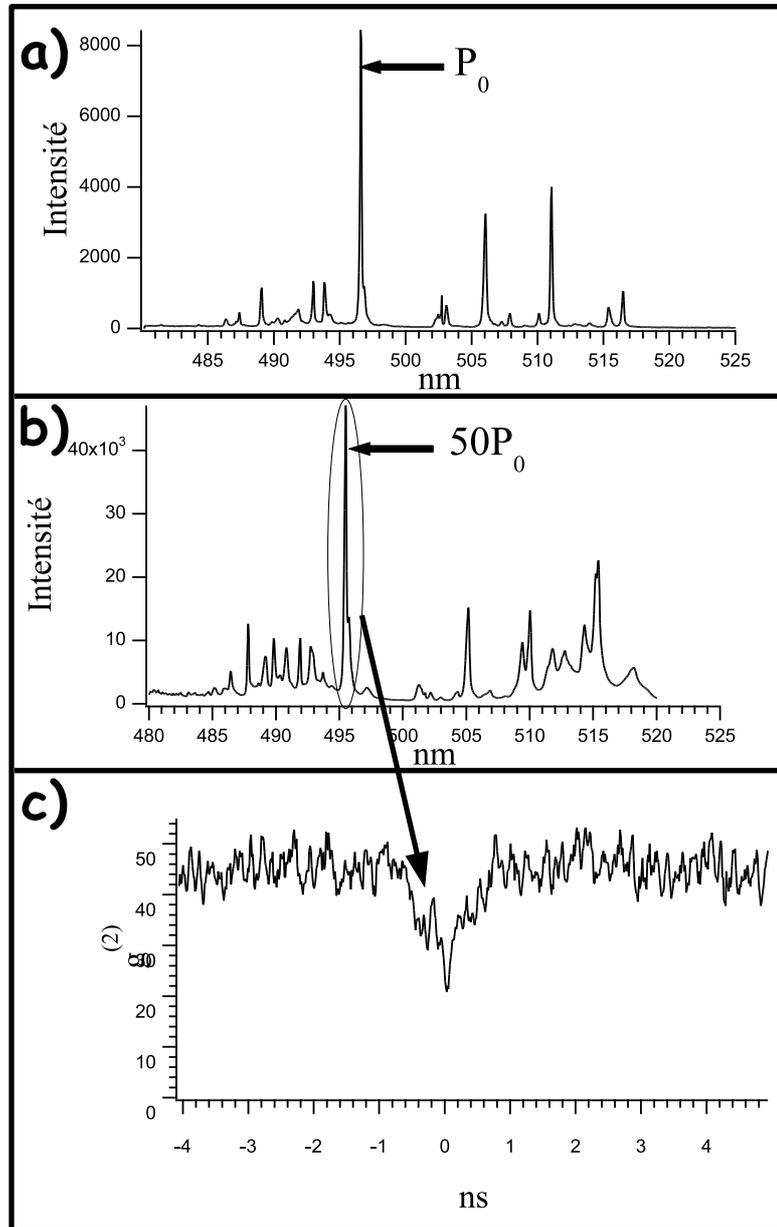


FIG. 7.3 – a) Spectre d'un micropilier de $1.6 \mu\text{m}$ de diamètre pour une puissance P_0 et pour une puissance $50P_0$ b). c) A $50P_0$, autocorrélation effectué en 60 s.

avoir une émission fortement directionnelle et donc favoriser la collection des photons.

Pour finir cette partie sur les microcavités à base d'oxyde avec des boîtes quantiques en tant qu'émetteur de lumière, nous devons mentionner les améliorations à apporter (et qui sont actuellement en cours) sur de tels systèmes. Il faut tout d'abord avoir une meilleure maîtrise des qualités de surface des miroirs d'oxyde. Cela devrait sensiblement améliorer le facteur de qualité Q . De plus, il faut travailler à améliorer les interfaces oxydes/semiconducteurs qui ne sont pas optimales. Le mélange entre croissance de miroirs d'oxyde et croissance d'épitaxie sous jets moléculaires ne facilitent pas le nombre de manipulations à effectuer avant d'avoir un échantillon final, contrairement aux matériaux III-V qui se font tout épitaxier.

7.2 Perspectives d'Expériences

7.2.1 Améliorations Techniques

D'un point de vue purement expérimental, il nous paraît important de spécifier des améliorations purement techniques nécessaires à la poursuite en toute pérennité des expériences futures. A l'heure actuelle, nous sommes capable d'effectuer avec notre montage des mesures de corrélation de photons (autocorrélation et corrélations croisées), des mesures de longueur de cohérence et des mesures de temps de vie relativement rapide (pas aussi bonnes qu'avec une caméra streak ($>10 ps$) mais tout de même des mesures de temps de vie de l'ordre de $50 ps$ sont envisageables avec les photodiodes à avalanche rapides).

Plusieurs améliorations pourraient être cependant apportées. D'abord en terme de spectroscopie, nous avons à notre disposition un monochromateur, modèle *THR 1000* de Jobin-Yvon, de distance focale équivalente de $1 m$ (avec possibilité de travailler en double passage). Cela devrait améliorer notre résolution d'au moins un facteur 4. Des largeurs spectrales de l'ordre de $10 \mu eV$ sont attendues par rapport à notre montage actuel, en tout cas $50 \mu eV$ devraient être facilement accessibles. De telles mesures devraient nous donner la vraie largeur de raies de boîtes quantiques et non pas une largeur limitée par le montage. Bien sûr, il n'est pas question de remplacer l'un de nos spectromètres par celui-ci mais plutôt de se servir de ce monochromateur comme d'un outil de mesure d'appoint. Ce monochromateur étant très lourd et très volumineux, on pourrait tout à fait envisager d'apporter la luminescence des BQs par une fibre pour effectuer des mesures de spectroscopie.

Ces mesures pourraient alors être corrélées avec des mesures de temps de cohérence en utilisant notre montage interférométrique type Michelson. En ce qui concerne ce montage, comme nous l'avons déjà souligné au chapitre 6, celui-ci a aussi besoin d'être optimisé. D'abord sur le nombre de photons que l'on peut espérer avoir par seconde sur les compteurs de photons. Cela n'est pas directement lié à l'interféromètre, en revanche, ce qui l'est, c'est la stabilité de celui-ci. Comme nous l'avons déjà souligné, des mesures précises de longueurs de cohérence, surtout lorsque l'on peut s'attendre à une contribution des phonons acoustiques, ne peuvent se faire que sur des temps d'intégration relativement

longs (supérieurs à la minute idéalement mais certainement supérieurs à la demi-heure). Un asservissement avec un laser monomode type Hélium-Néon en parallèle des mesures sur raies excitoniques est certainement à envisager. Avant cela, nous devons identifier pour sûr les causes du problème. Un asservissement de ce type n'est pas facile à mettre en place.

Un autre point important est la possibilité de pouvoir étudier des échantillons de boîtes quantiques de la famille des II-VI bien évidemment mais aussi de la famille des III-V. Il s'est avéré que durant ce travail de thèse, nous avons à deux reprises collaboré avec des groupes travaillant sur des échantillons faits de matériaux III-V. Ces travaux de collaboration ont été très fructueux et ont apporté des résultats sur des boîtes quantiques anisotropes [21] et sur des BQs en microcavité [22]. Toute l'optique de notre montage est conçue pour favoriser le visible mais on pourrait imaginer de rendre le montage plus flexible pour permettre l'étude d'échantillons émettant à d'autres longueurs d'ondes, essentiellement le proche infrarouge.

7.2.2 Effet Hong-Ou-Mandel avec des Boîtes Quantiques II-VI

Bien entendu, le titre de ce travail de thèse sous-entend que la prochaine expérience à tenter avec notre montage est celle de coalescence de photons, ou encore l'effet Hong-Ou-Mandel [23] dont nous avons déjà parlé au chapitre 2, partie 2.3.4. Nous avons vu que cette expérience prouve l'indiscernabilité de photons frappant en même temps et au même endroit une lame 50/50, mais nous avons vu aussi que cet effet impose au préalable d'avoir la condition $T_2 = 2T_1$. Or nous avons aussi présenté dans le chapitre 6 que pour le moment, cette condition était bien loin d'être satisfaite. Alors pourquoi tenter l'expérience malgré tout ?

Dans le chapitre précédent, il était question de décrire nos expériences mais aussi l'état de l'art des mesures de cohérence sur des boîtes quantiques uniques. Il est apparu que intrinsèquement, il n'y avait aucune raison fondamentale pour que l'on s'écarte de la condition $T_2 = 2T_1$. A nouveau, on rappelle que des mesures de hole-burning spectral sur des boîtes CdSe ont montré que le temps de cohérence d'un exciton dans une BQ est pratiquement aussi long que son temps de vie (ce n'est toujours pas $T_2 = 2T_1$ mais il y a tout de même un effet bien visible si $T_2 \approx T_1$) [1]. L'une des raisons avancées pour $T_2 \ll 2T_1$ est le temps de mesure bien plus long dans le cas d'une mesure interférométrique. Par contre, pour l'effet de coalescence, il y aurait peut être un moyen de passer outre ce problème. Considérons pour cela le montage de la figure 7.4. On peut reconnaître un montage de μPL avec une lame séparatrice excitation/fluorescence, un microscope qui focalise le laser et qui collecte la lumière émise par l'échantillon, le tout dans un cryostat à hélium. A présent, si l'on suppose que l'excitation se fait par un laser impulsif, en l'occurrence à l'aide d'un laser titane-saphir doublé, des impulsions toutes les $1/80 \text{ MHz} \approx 12 \text{ ns}$ vont venir créer des excitons dans la boîte à intervalles réguliers. L'idée est alors de venir placer un interféromètre de Mach-Zender (MZI) avec phase variable pour pouvoir dédoubler chaque impulsion laser. Toutes les périodes $T = 12 \text{ ns}$ il y aura alors deux impulsions lasers séparées d'un certain temps t_{MZ} . Ce temps ne peut excéder T et doit être plus long que la durée de vie moyenne d'un exciton (de l'ordre de 250 ps) sous risque

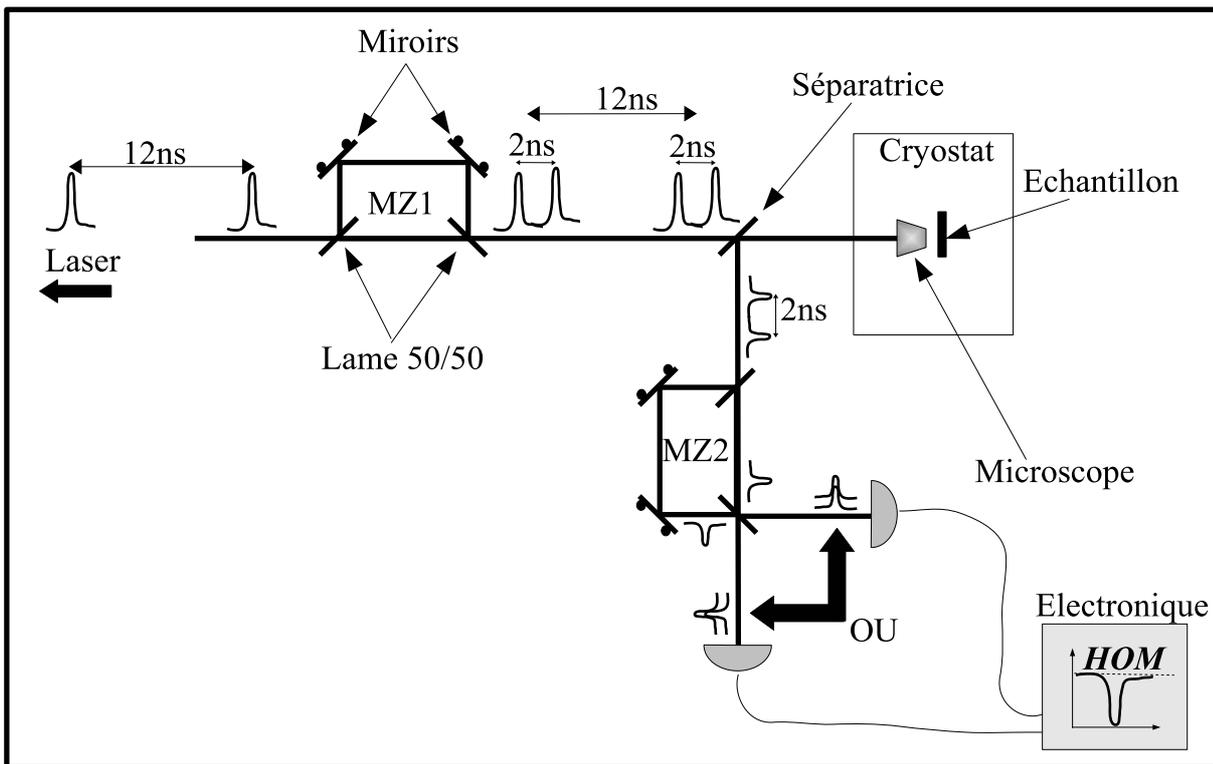


FIG. 7.4 – Montage de coalescence de photons avec un Mach-Zender MZ1 pour le décalage des impulsions de pompe, avant la lame séparatrice excitation/fluorescence, et un Mach-Zender MZ2 sur la voie fluorescence pour recombinaison des photons et obtenir l'effet Hong-Ou-Mandel [23].

d'avoir plus d'un exciton par impulsion. Expérimentalement, on prendra $t_{MZ} = 2 \text{ ns}$ pour se défaire de toutes les contraintes précitées.

En sortie du microscope, sur la "voie" fluorescence, il suffit simplement de placer à nouveau un interféromètre de Mach-Zender (MZ2) dont le retard est exactement t_{MZ} pour pouvoir avoir sur la dernière lame 50/50, deux impulsions lumineuses contenant chacune au plus un photon mais jamais deux (si l'on se place exactement à t_{MZ}). L'effet Hong-Ou-Mandel consiste donc à regarder une série d'impulsions doubles (séparées de t_{MZ}) tous les T . L'effet de coalescence interdira de voir des coïncidences pour une superposition parfaite des impulsions sur la lame. Cela revient donc à regarder quelle est la "discernabilité" de deux photons séparés seulement de $t_{MZ} = 2 \text{ ns}$. Il est raisonnable de croire que sous certaines conditions d'excitations, les phénomènes de décohérence sont certainement très faible sur une telle échelle de temps où l'on s'affranchit des effets de diffusion spectrale. Pour une mesure de contraste, l'élément important est le temps passé sur chaque point des franges d'interférences. Si la raie d'émission bouge, fluctue spectralement pendant ce temps de mesure alors l'état d'interférence fluctue également et va conduire à une réduction du contraste. Cela est une assez bonne raison pour tenter l'expérience de coalescence avant même d'avoir des boîtes quantiques en microcavités. Peut être que cela ne sera pas suffisant et qu'il faudra malgré tout de même utiliser des BQs en microcavités mais seule une expérience nous le dira.

7.2.3 Protocole de Génération d’Intrication en Temps-Energie

Pour terminer cette section "perspectives d’expériences", nous allons décrire une expérience proposée par notre groupe basé sur l’enchèvement en temps-énergie, encore appelé `time-bin` [25].

L’idée de départ est dû à James Franson de l’Université du Maryland en 1989 [26] qui montra que l’on pouvait créer un état enchevêtré comme celui décrit dans le chapitre 3, section 3.3.3 mais non plus en polarisation mais en retards temporelles par méthodes interférométriques. L’enchèvement créé de cette façon est alors plus robuste que celui créé en polarisation. La grande différence se fait sentir lorsque l’on veut envoyer des photons de la paire à longue distance. Cela nécessite alors d’utiliser des fibres optiques dans lesquelles les photons vont pouvoir se propager sur une centaine de kilomètres, tout en conservant leur état d’enchèvement. On sait que la polarisation d’un photon n’est pas préservée dans une fibre, du moins certainement pas sur de telles distances. Il paraît donc difficile de transporter l’état quantique de la partie 3.3.3 sur de grandes distances.

C’est dans ce cadre que s’inscrit l’article de Simon et Poizat [25] puisqu’il y est décrit la possibilité de créer des paires de photons enchevêtrés en `time-bin` avec de surcroît une façon de maîtriser le nombre de paires de photons créées par une impulsion laser excitatrice. Pour cela, les auteurs envisagent de faire l’expérience en utilisant une cascade atomique à 2 photons ou en utilisant la cascade biexciton-exciton qui émet elle-aussi une paire de photons comme nous l’avons déjà vu au chapitre 5. Sans rentrer dans les détails, à l’aide de deux excitations laser et en s’appuyant sur les niveaux X_d , X_2 et X_b , les auteurs ont pu montré que la création d’une seule paire de photons à la demande est parfaitement réalisable.

Ensuite, pour la création d’enchèvement en `time-bin` lui-même et non pas simplement la création de paires, il faut alors utiliser un montage similaire à celui décrit pour l’expérience de Hong-Ou-Mandel de la figure 7.4. La différence étant principalement que l’on doit superposer un laser non-résonnant (donc au-dessus des barrières) au laser impulsionnel déjà en place pour l’expérience de Mandel. Il faut également, sur chaque détecteur placé un monochromateur dont l’un sera placé sur la raie biexcitonique et l’autre sur la raie excitonique. Cette expérience, bien que difficile à faire au premier abord, n’est pas irréalisable à l’heure actuelle.

7.3 Conclusion Générale

En conclusion générale, il est bon de revenir sur les objectifs de départ de ce travail de thèse, sur ce qui a été fait, ce qui n’a pas été fait et pourquoi, et ce qui reste à faire.

Le sujet initial était la réalisation de porte logique quantique tout optique. Pour cela, il nous fallait commencer par obtenir une source de photons uniques indiscernables. Les boîtes quantiques semiconductrices ont montré depuis une dizaine d’années qu’elles remplissaient plutôt bien les critères à atteindre pour une telle source. De plus, la spécialité

des équipes de recherches de Grenoble dans les semiconducteurs II-VI était d'autant plus attractive que les boîtes quantiques faites à base de ces matériaux n'ont pratiquement pas été étudiées jusqu'à présent et présentent des durées de vie 5 à 6 fois plus courtes que les boîtes quantiques que l'on qualifierait de classiques faites à partir de semiconducteur de la famille des III-V. Cependant, ces temps caractéristiques plus courts ont nécessité la mise en place d'un montage de corrélations de photons et de mesures de durées de vie plus rapide que les montages d'autres groupes travaillant sur la même thématique. Nous avons montré que cette tâche a été atteinte et que notre montage expérimental basse température à bonne résolution temporelle et à haute résolution spatiale et spectrale est bien adapté pour l'étude de tels systèmes. Notre partie expérimental de corrélations de photons a également été validé avec succès.

Toutefois, à la vue de ce travail de thèse, il est apparu que, contrairement à ce qui était espéré, les boîtes quantiques II-VI ne sont pas, pour le moment, très bien adaptées pour faire des expériences d'optique quantique. En effet pour commencer, il paraît difficile à la vue de la technologie actuelle de diminuer de façon conséquente la densité de boîtes par cm^2 . Ceci est un gros désavantage car la plupart des meilleurs résultats précédents sur boîtes quantiques uniques ont été obtenus avec seulement une boîte sous le microscope. Même si spectralement chaque boîte peut être isolée, la présence proche (spatialement !) d'autres boîtes que celle étudiée ne peut que nuire, entre autre, aux mesures de cohérence ou de dégroupements de photons. En effet, des effets tunnels ou de type Förster de transfert d'excitation sont toujours à envisager dans de telles conditions. D'un certain point de vue, le couplage entre boîtes peut être une bonne chose mais seulement lorsque ce couplage est contrôlé. On se référera en particulier aux travaux sur les molécules quantiques (Quantum Molecules) [27, 28]. En plus d'un montage type Hanbury-Brown Twiss, nous avons donc mis place un interféromètre de Michelson nous permettant de mesurer les longueurs de cohérence des photons émis par la recombinaison des excitons dans la boîte. Cet outil indispensable nous a permis de mesurer directement le temps de cohérence T_2 et de se rendre compte que peut être, les boîtes quantiques de la famille des II-VI connaissent des diffusions spectrales assez conséquentes et malheureusement à effet catastrophique pour les effets que nous voudrions voir. Le premier est bien entendu l'effet de coalescence de photons. Tout est actuellement en place pour tenter cette expérience. A nouveau, ce qui pourrait empêcher son observation serait les défauts de la source elle-même. Avec la fabrication de microcavités adaptées aux boîtes quantiques II-VI, l'espoir est toujours de mise même si il est pratiquement déjà établi qu'il est pratiquement impensable d'espérer obtenir des facteurs de Purcell aussi bon que ceux obtenus par des boîtes III-V en microcavités.

L'avance des matériaux III-V en optique quantique et dans le domaine de l'information quantique n'est pas simplement historique. Cette avance ne semble pas être rattrapable d'un point de vue technologique. Le fait que la Nature ait donné un paramètre de maille pratiquement identique à GaAs et AlAs est un don que les matériaux II-VI ne connaissent pas. Ceci dit, durant ces trois années, ce travail de thèse s'est donc détourné de l'optique quantique et de l'information quantique pour se focaliser plutôt sur la physique des boîtes quantiques et des semiconducteurs. Les expériences d'excitation à deux photons infra-rouges sont un bon exemple d'une orientation qui n'était pas au départ prévu mais qui est potentiellement intéressante et dont pratiquement tout reste à faire.

Enfin personnellement, j'ai beaucoup appris durant ces 3 années sur la physique des semiconducteurs, la physique des matériaux et la physique du solide en général. Sujets, qui au début de ma thèse n'étaient pas mes spécialités. L'excellent environnement scientifique dans lequel j'ai travaillé a beaucoup contribué à ma compréhension de ces sujets. Les aléas et autres circonstances diverses et variées me laissent avec une certaine frustration de ne pas avoir fait plus. Après avoir travaillé pendant trois ans sur ce montage optique, il semble que celui-ci soit à présent prêt à donner des résultats intéressants.

Bibliographie

- [1] *Exciton dephasing in self-assembled CdSe quantum dots.*
P. Palinginis, H. Wang, S.V. Goupalov, D.S. Citrin, M. Dobrowolska, et J. K. Furdyna, Phys. Rev. B **70**, 73302 (2004).
- [2] *Two-Photon Coherent Control of a Single Quantum Dot.*
T. Flissikowski, A. Betke, I.A. Akimov, et F. Henneberger, Phys. Rev. Lett. **92**, 227401 (2004).
- [3] *Few-particles effects in single CdTe quantum dots.*
L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, et H. Mariette, Phys. Rev. B **65**, 121314 (2002).
- [4] *Temperature dependence of the exciton homogeneous linewidth in In_{0.6}Ga_{0.4}As/GaAs self-assembled quantum dots.*
M. Bayer, et A. Forchel, Phys. Rev. B **65**, 41308 (2002).
- [5] *Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies.*
E. M. Purcell, Phys. Rev. **69**, 681 (1946).
- [6] *Cavity Quantum Electrodynamics.*
S. Haroche, et D. Kleppner, Phys. Tod. **42**, 24 (1989).
- [7] *Observation of cavity-enhanced single-atom spontaneous emission.*
P. Goy, J.M. Raimond, M. Gross, et S. Haroche, Phys. Rev. Lett **50**, 1903 (1983).
- [8] *Controlled generation of single photons from a strongly coupled atom-cavity.*
A. Kuhn, M. Hennrich, T. Bondo, et G. Rempe, Appl. Phys. B **69**, 373 (1999).
- [9] *Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity.*
R.J. Thompson, G. Rempe, et H.J. Kimble, Phys. Rev. Lett. **68**, 1132 (1992).
- [10] *Quantum Rabi oscillation : a direct test of field quantization in a cavity.*
M. Brune, F. Schmidt-Kaler, A. Maali, J. Dreyer, E. Hagley, J.M. Raimond, et S. Haroche, Phys. Rev. Lett. **76**, 1800 (1996).
- [11] *Step by step engineered many particle entanglement.*
A. Rauschenbeutel, G. Nogues, S. Osnaghi, P. Bertet, M. Brune, J.M. Raimond, et S. Haroche, Science **288**, 2024 (2000).
- [12] *Quantum boxes as active probes for photonic microstructures : The pillar microcavity case.*
J.M. Gérard, D. Barrier, J.Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, et T. Rivera, Appl. Phys. Lett. **69**, 449 (1996).
- [13] *Enhanced Spontaneous Emission by Quantum Boxes in a Monolithic Optical Microcavity.*

- J.M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, et V. Thierry-Mieg, Phys. Rev. Lett. **81**, 1110 (1998).
- [14] *High-Q wet-etched GaAs microdisks containing InAs quantum boxes.*
B. Gayral, J.M. Gérard, A. Lemaître, C. Dupuis, L. Manin, et J.L. Pelouard, Appl. Phys. Lett. **75**, 1908 (1999).
- [15] *Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity.*
T. Yoshie, A. Scherer, T. Hendrickson, G. Khitrova, H.M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O.B. Shchkin, et D.G. Deppe, Nature **432**, 200 (2004).
- [16] *Indistinguishable single photons from a single-quantum dot in a two-dimensional photonic crystal cavity.*
S. Laurent, S. Varoutsis, L. Le Gratiet, A. Lemaître, I. Sagnes, F. Raineri, A. Levenson, I. Robet-Philip, et I. Abram, Appl. Phys. Lett. **87**, 163107 (2005).
- [17] *Croissance et contrôle de l'émission spontanée de boîtes quantiques semiconductrices CdSe/ZnSe placées en microcavités optiques.*
I.C. Robin, Thèse de Doctorat de l'Université Joseph Fourier (2005).
- [18] *Electromagnetic study of the quality factor of pillar microcavities in the small diameter limit.*
P. Lalanne, J.P. Hugonin, et J.M. Gérard, Appl. Phys. Lett. **84**, 4726 (2004).
- [19] *Purcell effect for CdSe/ZnSe quantum dots placed into hybrid micropillars.*
I.C. Robin, R. André, A. Balocchi, S. Carayon, S. Moehl, J.M. Gérard et L. Ferlazzo, Appl. Phys. Lett. à paraître.
- [20] *InAs quantum dots : artificial atoms for solid-state cavity-quantum electrodynamics.*
J.M. Gérard, et B. Gayral, Phys. E **9**, 131 (2001).
- [21] *Fast exciton spin relaxation in single quantum dots.*
I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, C. Couteau, J.P. Poizat, et J.M. Gérard, Phys. Rev. B **71**, 233304 (2005).
- [22] *Towards a high efficiency electrically-injected source of single photons for quantum cryptography.*
S. Olivier, L. Grenouillet, S. Moehl, K. Kheng, J.M. Gérard, C. Couteau, J.P. Poizat, et A. Lemaître, Proceeding ECIO 2005.
- [23] *Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference.*
C.K. Hong, Z.Y. Ou, et L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **59**, 2044 (1987).
- [24] *A scheme for efficient quantum computation with linear optics.*
E. Knill, R. Laflamme, et G.J. Milburn, Nature **409**, 46 (2001).
- [25] *Creating Single Time-Bin-Entangled Photons Pairs.*
C. Simon, et J.P. Poizat, Phys. Rev. Lett. **94**, 30502 (2005).
- [26] *Bell Inequality for Position and Time.*
J.D. Franson, Phys. Rev. Lett. **62**, 2205 (1989).
- [27] *Coupled Quantum Dots Fabricated by Cleaved Edge Overgrowth : From Artificial Atoms to Molecules.*
G. Schedelbeck, W. Wegscheider, M. Bichler, et G. Abstreiter, Science **278**, 1792 (1997).

-
- [28] *Coupling and Entangling of Quantum States in Quantum Dot Molecules.*
M. Bayer, P. Hawrylak, K. Hinzer, S. Fafard, M. Korkusinski, Z.R. Wasilewski, O. Stern, et A. Forchel, *Science* **291**, 451 (2001).