



**HAL**  
open science

# Microcavités semiconductrices structurées pour la génération paramétrique optique

Timothée Lecomte

► **To cite this version:**

Timothée Lecomte. Microcavités semiconductrices structurées pour la génération paramétrique optique. Matière Condensée [cond-mat]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2011. Français. NNT: . tel-00597522

**HAL Id: tel-00597522**

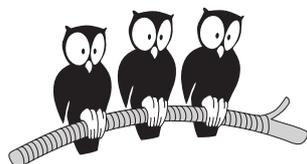
**<https://theses.hal.science/tel-00597522>**

Submitted on 1 Jun 2011

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

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

**ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE**  
**Département de Physique**



THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI - PIERRE ET  
MARIE CURIE  
Spécialité : Physique  
École Doctorale de Physique de la Région Parisienne

présentée par  
**Timothée LECOMTE**

pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Sujet de la thèse :

**Microcavités semiconductrices structurées  
pour la génération paramétrique optique**

Soutenue le 25 mars 2011 devant le jury composé de :

|      |                     |                    |
|------|---------------------|--------------------|
| M.   | Thierry AMAND       | Rapporteur         |
| Mme. | Jacqueline BLOCH    | Examinatrice       |
| M.   | Alberto BRAMATI     | Examinateur        |
| Mme. | Emanuelle DELEPORTE | Examinatrice       |
| M.   | Philippe ROUSSIGNOL | Examinateur        |
| M.   | Denis SCALBERT      | Rapporteur         |
| M.   | Jérôme TIGNON       | Directeur de thèse |



“Où donc est le chemin par lequel se distribue la lumière?”

*Job 38:24*



Ce travail de thèse n'aurait pas été possible sans la participation et l'accompagnement de beaucoup de personnes que je souhaite remercier.

Bien sûr, je voudrais exprimer toute ma gratitude à Jérôme Cignon, mon directeur de thèse, qui a su me diriger, évaluer mes efforts, gérer mes prises de position et mes doutes, me transmettre les connaissances physiques dont j'avais besoin et me faire profiter de son expérience du milieu de la Recherche, tout cela avec bienveillance et amitié. Je suis profondément reconnaissant à Philippe Roussignol, directeur de l'équipe dont j'ai fait partie au sein du laboratoire Pierre Aigrain, qui a supervisé mes travaux du haut de toute son expérience. Merci à Claude Delalande et Jean-Marc Berroir, directeurs successifs du laboratoire Pierre Aigrain pendant que j'y ai été accueilli.

Un grand merci à Christos Flytzanis, dont les opinions fermes m'ont appris à garder un œil critique sur les résultats scientifiques, en particulier sur les miens bien sûr ! Merci aussi pour les discussions captivantes sur l'optique non-linéaire, pour la bibliographie abondante qui m'est venue de vos mains, et merci également de m'avoir guidé vers l'Institut Pasteur, où j'ai effectivement pu trouver un post-doc qui me convient.

Je suis aussi très reconnaissant à Carole Diederichs, qui m'a accueilli au laboratoire alors que j'étais en stage de licence en 2005, puis en stage de master 2 en 2007, pendant qu'elle-même terminait sa thèse sur le sujet que j'allais poursuivre. Ton travail de qualité m'a donné une très bonne impulsion pour démarrer cette thèse !

J'ai eu également le grand plaisir de travailler avec David Taj, qui a rejoint le laboratoire comme post-doc, et a participé à une partie de l'étude des polaritons que je présente dans ce manuscrit. Merci David pour ton enthousiasme ! Je crois vraiment que c'est grâce à toi que j'ai réalisé que je pouvais modéliser à la fois simplement et de manière réaliste tout ce qui se passait dans nos expériences. C'est grâce à ce déclic que mon manuscrit contient souvent des simulations pour interpréter les résultats expérimentaux !

Dans l'équipe d' "Optique cohérente et non-linéaire", il me faut aussi remercier les membres permanents que je n'ai pas déjà cités : Christophe Voisin (je n'oublierais pas qu'en tant qu'écrivain prolifique tu m'avais promis de rédiger une préface pour mettre en valeur mon manuscrit de thèse!) et Guillaume Cassabois, qui ont animé l'équipe avec dynamisme, et ont eu le courage de nous accompagner régulièrement pour déguster les mets du "Pot"...

Je souhaite la plus grande réussite à Vincenzo Arditzone dans la poursuite des travaux sur l'optique non-linéaire avec les polaritons. Ces quelques mois en ta compagnie ont été très agréables, et je suis certain que les polaritons auront fort à faire pendant ta thèse! Merci également à Marco Abbarchi, qui est arrivé comme post-doc quand je débute la rédaction de mon manuscrit de thèse, et qui a mis tout son savoir-faire expérimental à l'œuvre pour faire avancer les projets sur les microcavités en compagnie de Vincenzo.

Je voudrais aussi laisser une trace des amitiés que j'ai eu avec les doctorants de la P18 : Alice Berthelot, Florian Iglésias, Duc Trung Nguyen (mon voisin de bureau préféré!), Hai Son Nguyen (merci de nous avoir fait découvrir les pâtisseries sucré-salé vietnamiennes!!), Benjamin Langlois, Fabien Violla, Cyrielle Poquelet...

J'espère que je ne suis pas parti en étant "en froid" avec mes cryogénistes préférés, Olivier Andrieu et Chiervy Desvignes! Même si je n'étais qu'un petit consommateur comparé à d'autres éléments du département, merci à vous de m'avoir fourni régulièrement le précieux liquide.

Merci aussi à David Darson, Philippe Pace et Anne Denis du laboratoire d'électronique, pour leur aide dans les projets que j'ai menés. Merci en particulier à David pour ton travail précieux sur les photodiodes bas-bruit et la caméra, travail qui m'a permis au passage d'assouvir mon goût personnel pour l'électronique et la programmation!

Merci bien évidemment à mes secrétaires préférées, Anne Maignon et Fabienne Rénia, qui se sont bien occupées de tous mes besoins

---

administratifs!

Merci aussi à tous ceux que j'ai côtoyé, techniciens, étudiants, ingénieurs, chercheurs, parmi lesquels je vais sûrement oublier des gens pourtant importants : Dimitri Oustinov, François Parmentier, François-Régis Jasnôt, Julien Madéo, Pascal Morfin, Christophe Mora, Michael Rosticher, Allan Uguet...

Merci aussi à tous nos partenaires dans le cadre du projet ANR "Gemini" : Jacqueline Bloch, Aristide Lemaitre, Alberto Bramati, Cristiano Ciuti, Alberto Amo, Claire Adrados, Esther Wertz, Jérôme Lefrère, Simon Pigeon.

Enfin, et surtout, merci à mes parents et à mes amis, à tous ceux que je considère volontiers comme mes frères et sœurs, dont l'amitié et les marques d'affection sont inestimables, et à celui dont les "qualités invisibles se voient clairement" dans ce qui nous entoure!

**Résumé :**

Cette thèse est consacrée aux phénomènes paramétriques optiques dans les microcavités de semiconducteurs structurées. Les non-linéarités des excitons des puits quantiques, associées au confinement optique, permettent d'observer des processus paramétriques sous excitation résonnante. Dans le régime d'oscillation, un couple de faisceaux est généré, dont les corrélations d'intensité sont potentiellement quantiques.

Dans les cavités planaires, les conditions d'oscillation (angle de pompage, couplage fort) sont restrictives, et les corrélations sont limitées par le déséquilibre en intensité des faisceaux produits.

Nous étudions deux approches de structuration pour lever ces restrictions. Dans la première, des microcavités sont gravées en fils. Le confinement latéral fait apparaître une collection de modes. Nous montrons dans ces fils l'existence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie et mesurons les corrélations d'intensité des faisceaux générés. Les observations sont confrontées quantitativement à un modèle de polaritons en interaction.

Dans la seconde approche, nous étudions des microcavités couplées. Les modes sont délocalisés sur les multiples cavités. Nous présentons l'oscillation paramétrique à basse température. Puis nous analysons un échantillon conçu pour la génération paramétrique à température ambiante. L'étude spectrale valide un modèle de système à 2 niveaux, utilisé pour prévoir les conditions d'observation du régime d'oscillation. Enfin, nous présentons une étude en polarisation de la génération paramétrique. Nous mesurons, sur une large gamme de paramètres, le rapport des potentiels d'interaction entre excitons qui conservent ou non la polarisation.

**Mots clefs :**

|                |                                  |
|----------------|----------------------------------|
| Microcavité    | Fils photoniques                 |
| Semiconducteur | Oscillation paramétrique optique |
| Polariton      | Corrélations quantiques          |

LABORATOIRE PIERRE AIGRAIN - ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE  
24, rue Lhomond  
75005 Paris

## **Structured semiconductor microcavities for optical parametric generation**

### **Abstract :**

This work is devoted to optical parametric phenomena in structured semiconductor microcavities. Non-linearities of the excitons in quantum wells, associated with optical confinement, make parametric processes possible. In the oscillation regime, a pair of beams is generated, whose intensity correlations are potentially of quantum nature.

In planar cavities, the oscillation conditions are restrictive (pump at non-zero angle, low temperatures for strong coupling), and the correlations are limited by the beams intensity unbalance.

We study two approaches to structuring in order to lift these restrictions. In the first approach, the microcavities are etched as wires. The lateral confinement produces a collection of modes. We show the existence of energy-degenerate parametric oscillation in these wires. The polarization and power behaviors are studied and validate a model of interacting polaritons. We measure the intensity correlations of the generated beams, compared to a model of fluctuations.

In the second approach, we study coupled microcavities. Modes are delocalized over the multiples cavities. We show parametric oscillation at low temperature. Then we analyze a sample designed for parametric generation at room temperature. The spectral study validates the model of a 2-level system, which is used to predict the conditions to reach the regime of oscillation. Finally, we present a study of the polarization properties of the parametric generation. We measure over a wide range of parameters the ratio of the interaction potentials that conserve and reverse polarization between excitons.

### **Keywords :**

|               |                                |
|---------------|--------------------------------|
| Microcavities | Photonic wires                 |
| Semiconductor | Optical parametric oscillation |
| Polariton     | Quantum Correlations           |



# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction</b>   | <b>15</b> |
| Références . . . . .  | 18        |
| <b>1 Optique non-linéaire en microcavité</b>                                | <b>21</b> |
| 1.1 Traitement classique de la propagation dans les milieux non-linéaires . | 21        |
| 1.1.1 Polarisation non-linéaire . . . . .                                   | 22        |
| 1.1.2 Polarisation du système à deux niveaux . . . . .                      | 22        |
| 1.1.3 Applications au second ordre, $\chi^{(2)}$ . . . . .                  | 24        |
| 1.1.4 Applications au troisième ordre, $\chi^{(3)}$ . . . . .               | 29        |
| 1.2 Le puits quantique comme milieu non-linéaire . . . . .                  | 35        |
| 1.2.1 Exciton dans un semiconducteur massif . . . . .                       | 36        |
| 1.2.2 Exciton dans un puits quantique . . . . .                             | 37        |
| 1.2.3 Couplage avec la lumière . . . . .                                    | 39        |
| 1.2.4 Plusieurs excitons . . . . .  | 39        |
| 1.3 Les miroirs de Bragg . . . . .  | 41        |
| 1.3.1 Microcavité formée de deux miroirs . . . . .                          | 43        |
| 1.4 Microcavités et polaritons . . . . .                                    | 46        |
| 1.4.1 Cavité et puits . . . . .   | 46        |
| 1.4.2 Couplage fort et couplage faible, temps de vie . . . . .              | 48        |
| 1.4.3 Origines du passage au couplage faible . . . . .                      | 49        |
| 1.5 Phénomènes paramétriques en microcavité . . . . .                       | 50        |
| 1.6 Fluctuations d'intensité et corrélations . . . . .                      | 54        |
| 1.6.1 Introduction au bruit quantique . . . . .                             | 54        |
| 1.6.2 Bruit d'intensité . . . . .   | 56        |
| 1.6.3 Corrélations entre deux faisceaux . . . . .                           | 57        |
| 1.6.4 Effets d'une lame séparatrice sur le bruit d'un faisceau . . . . .    | 59        |
| 1.6.5 Effets des pertes sur les corrélations entre deux faisceaux . . . . . | 59        |
| 1.6.6 Effets des interactions non-linéaires sur le bruit . . . . .          | 60        |
| Références . . . . .  | 64        |
| <b>2 Techniques expérimentales</b>  | <b>69</b> |
| 2.1 Fabrication des échantillons . . . . .                                  | 69        |
| 2.2 Cryogénie . . . . .   | 70        |
| 2.3 Excitation laser . . . . .  | 71        |
| 2.3.1 Production et caractéristiques du faisceau laser . . . . .            | 71        |
| 2.3.2 Optique gaussienne et focalisation . . . . .                          | 72        |
| 2.3.3 Configuration pompe-sonde . . . . .                                   | 75        |
| 2.4 Imagerie de l'émission . . . . .  | 76        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 2.4.1    | Imagerie de la surface . . . . .   | 76         |
| 2.4.2    | Imagerie du plan de Fourier . . . . .  | 76         |
| 2.4.3    | Spectromètre . . . . .   | 79         |
| 2.5      | Mesure temporelle de l'intensité de l'émission, bruit . . . . .  | 80         |
| 2.5.1    | Extraction des faisceaux, filtrage spatial dans un deuxième plan de Fourier . . . . .                              | 81         |
| 2.5.2    | Photodiodes . . . . .  | 81         |
| 2.5.3    | Amplification du photocourant . . . . .  | 83         |
| 2.5.4    | Mesure du bruit haute fréquence . . . . .  | 87         |
|          | Références . . . . .   | 93         |
| <b>3</b> | <b>Oscillation paramétrique optique dans les fils photoniques</b>  | <b>95</b>  |
| 3.1      | État de l'art . . . . .  | 96         |
| 3.2      | Structure des fils photoniques . . . . .   | 96         |
| 3.3      | Modes des fils photoniques . . . . .   | 98         |
| 3.3.1    | Confinement optique latéral . . . . .  | 98         |
| 3.3.2    | Couplage avec les excitons . . . . .   | 100        |
| 3.4      | Caractérisation en photoluminescence . . . . .   | 102        |
| 3.4.1    | Dépendance en épaisseur . . . . .  | 103        |
| 3.4.2    | Levée de dégénérescence en polarisation . . . . .  | 104        |
| 3.4.3    | Largeurs de raie . . . . .   | 105        |
| 3.5      | Oscillation paramétrique optique en excitation résonante . . . . .   | 107        |
| 3.5.1    | Processus dégénéré en énergie . . . . .  | 107        |
| 3.5.2    | Comportement en polarisation . . . . .   | 108        |
| 3.5.3    | Parité . . . . .   | 109        |
| 3.5.4    | Suivi de l'accord de phase ( $E, k$ ) . . . . .  | 109        |
| 3.5.5    | Images dans le plan de Fourier . . . . .   | 110        |
| 3.5.6    | Processus supplémentaires . . . . .  | 110        |
| 3.6      | Étude en puissance de l'OPO . . . . .  | 110        |
| 3.6.1    | Modèle de polaritons en interaction . . . . .  | 112        |
| 3.6.2    | Étude en fonction du désaccord . . . . .   | 116        |
| 3.6.3    | Influence de la taille des fils . . . . .  | 118        |
| 3.7      | Mesures du bruit de photons . . . . .  | 120        |
| 3.7.1    | Bruit des faisceaux individuels . . . . .  | 120        |
| 3.7.2    | Bruit de la différence et de la somme d'intensités . . . . .   | 120        |
| 3.7.3    | Taux de corrélation . . . . .  | 122        |
| 3.7.4    | Modèle de fluctuations . . . . .   | 122        |
|          | Références . . . . .   | 131        |
| <b>4</b> | <b>Oscillation paramétrique optique dans une microcavité couplée à basse température et à température ambiante</b> | <b>135</b> |
| 4.1      | Oscillation paramétrique dans une microcavité couplée à froid . . . . .  | 135        |
| 4.2      | État de l'art des microcavités à température ambiante . . . . .  | 141        |
| 4.3      | Propriétés des microcavités à température ambiante . . . . .   | 141        |
| 4.3.1    | Indices optiques . . . . .   | 141        |
| 4.3.2    | Excitons . . . . .   | 141        |
| 4.4      | Étude de $\chi$ par la dispersion en photoluminescence, en excitation non-résonante . . . . .                      | 143        |
| 4.4.1    | Modèle de photoluminescence . . . . .  | 143        |
| 4.4.2    | Expérience de photoluminescence . . . . .  | 146        |

|          |  |            |
|----------|--|------------|
| 4.5      | Processus en excitation résonante . . . . .                                  | 149        |
| 4.5.1    | Comparaison avec l'étude non-résonnante . . . . .                            | 149        |
| 4.5.2    | Réflectivité . . . . .   | 151        |
| 4.5.3    | Diffusion Rayleigh . . . . .   | 153        |
| 4.5.4    | Oscillation paramétrique optique . . . . .                                   | 158        |
| 4.5.5    | Échantillon "idéal" pour l'OPO . . . . .                                     | 164        |
|          | Références . . . . .   | 167        |
| <b>5</b> | <b>Interaction entre polaritons résolue en polarisation</b>                  | <b>171</b> |
| 5.1      | État de l'art . . . . .  | 172        |
| 5.2      | Échantillon . . . . .  | 173        |
| 5.3      | Diffusion paramétrique en excitation résonnante . . . . .                    | 174        |
| 5.3.1    | Conservation du vecteur d'onde . . . . .                                     | 175        |
| 5.4      | Modèle hamiltonien . . . . .   | 177        |
| 5.5      | Étude de l'intensité du complémentaire . . . . .                             | 178        |
| 5.5.1    | Intensité du complémentaire en fonction de la puissance de sonde . . . . .   | 178        |
| 5.5.2    | Intensité du complémentaire en fonction de la puissance de pompe . . . . .   | 178        |
| 5.5.3    | Intensité du complémentaire en fonction du désaccord laser-exciton . . . . . | 179        |
| 5.6      | Étude en fonction de la polarisation pompe-sonde . . . . .                   | 180        |
| 5.6.1    | Polarisation du complémentaire . . . . .                                     | 181        |
| 5.6.2    | Intensité du complémentaire . . . . .  | 181        |
| 5.6.3    | Étude de $V_2/V_1$ en fonction du désaccord . . . . .                        | 183        |
| 5.6.4    | Conséquences des valeurs de $V_2/V_1$ obtenues . . . . .                     | 185        |
|          | Références . . . . .   | 186        |
|          | <b>Conclusion générale</b>   | <b>189</b> |
| <b>A</b> | <b>Effets des pertes sur les corrélations entre deux faisceaux</b>           | <b>191</b> |
| <b>B</b> | <b>Calibration de la polarisation d'excitation</b>                           | <b>195</b> |
| <b>C</b> | <b>Calibration des dispersions</b>   | <b>197</b> |
| C.1      | Relation de passage entre la microcavité et l'extérieur . . . . .            | 197        |
| C.2      | Calibration de la caméra . . . . .   | 198        |
| C.3      | Autres ordonnées . . . . .   | 198        |
| <b>D</b> | <b>Changement de base dans le modèle de polaritons en interaction</b>        | <b>201</b> |



# Introduction

Les dispositifs à base de semiconducteurs sont des produits de la physique de la matière condensée qui appartiennent désormais à notre vie quotidienne. Les propriétés électroniques des semiconducteurs ont révolutionné l'informatique et l'électronique. Leurs propriétés optiques ne sont pas en reste : les diodes électroluminescentes servent à l'affichage, les diodes laser sont utilisées dans les lecteurs optiques et servent de sources de lumière pour les télécommunications par fibre optique, accompagnées d'amplificateurs et de détecteurs eux-aussi à base de semiconducteurs.

L'effet laser a été observé pour la première fois dans le GaAs en 1962 [1], aux températures cryogéniques, dans ce qui n'était pas encore une hétérostructure. À peu près au même moment, les avancées dans les techniques de croissance des semiconducteurs ont permis de réaliser des objets plus complexes par dépôts de couches minces, d'abord par épitaxie en phase liquide, puis dans les années 70 par épitaxie par jets moléculaires (MBE) et épitaxie en phase vapeur d'organo-métalliques (MOCVD). Ainsi, en 1971 [2], la première diode laser fonctionnant à température ambiante en continu était une double-hétérostructure, résultat qui a été salué par le prix Nobel de Physique 2000 attribué à ALFEROV et KROEMER. Depuis, les nanostructures de semiconducteurs ont offert de nombreuses possibilités de contrôler l'interaction lumière-matière.

Les microcavités de semiconducteurs sont des nanostructures planaires formées par empilement de couches minces. Elles contiennent des puits quantiques, qui confinent les porteurs dans un plan, placés à l'intérieur d'une cavité formée par deux miroirs de Bragg qui confine le champ électromagnétique sur une échelle de quelques  $\lambda$  [3]. Ces structures ont abouti à une nouvelle génération de lasers à semiconducteurs, dits "lasers à émission de surface à cavité verticale" (VCSEL), réalisés pour la première fois en 1979 [4] à basse température, puis à température ambiante en 1989 [5]. Ces lasers fonctionnent dans le régime de couplage faible, dans lequel la transition excitonique du puits quantique est couplée perturbativement à la lumière. En 1992, WEISBUCH *et al.* [6] ont observé pour la première fois le régime de couplage fort dans une microcavité. Les états-propres du système sont alors des états mixtes exciton-photon, les polaritons de microcavité. Les recherches ont d'abord permis d'étudier la dispersion en énergie des polaritons dont la très forte courbure en centre de zone est exceptionnelle [7, 8], puis leurs processus de relaxation [9, 10]. Il existe par exemple un effet de *bottleneck* qui fait que les polaritons s'accumulent au niveau du point d'inflexion de cette dispersion [11, 12]. Les polaritons sont des bosons dans la limite de faible densité mais, à cause de l'interaction coulombienne entre leurs composantes excitoniques, ils sont soumis à des processus non-linéaires. Associés à la forme caractéristique de la dispersion et aux effets bosoniques, ces processus non-linéaires sont très riches. Sous excitation non-résonante, une émission de type laser a été observée en régime de couplage fort [13],

puis la signature d'un condensat de polaritons a été mise en évidence[14].

En excitation résonante, c'est toute la richesse des phénomènes paramétriques qui est accessible dans les microcavités. Parmi ces phénomènes, citons en particulier l'oscillation paramétrique optique, qui est la base de sources accordables dans des gammes de longueur d'onde non accessibles par les sources classiques, notamment dans l'infrarouge moyen et lointain (3 à 100  $\mu\text{m}$ ). L'oscillation paramétrique génère de façon cohérente une paire de faisceaux, *signal* et *complémentaire*, à des énergies décalées par rapport à la pompe, à partir de l'interaction décrite par la susceptibilité non-linéaire  $\chi^{(2)}$  ou  $\chi^{(3)}$  (selon que l'on considère une non-linéarité du deuxième ou du troisième ordre)[15, 16]. La conservation de l'énergie ainsi que la condition dite d'*accord de phase* impose les fréquences des faisceaux générés. Les oscillateurs paramétriques génèrent également des états purement quantiques du champ électromagnétique : des états comprimés et des paires de photons jumeaux ou intriqués[17, 18], qui sont caractérisés par un bruit de photon inférieur à la limite quantique standard, sur certaines quadratures. Les paires de photons fortement corrélés sont un des fondements de la cryptographie quantique[19, 20]. Elles permettent aussi de réaliser des sources de photons uniques dits *annoncés*[20, 21]. Ces paires peuvent être préparées sous la forme d'un état intriqué EPR (Einstein-Podolski-Rosen)[20]. Les sources paramétriques usuelles sont constituées de cristaux non-linéaires comme le niobate de lithium, insérés dans des cavités optiques élaborées. Pour atteindre les longueurs d'interaction nécessaires à l'oscillation, il est nécessaire d'assurer l'accord de phase entre les faisceaux générés et la pompe. On recourt alors à des stratégies comme, par exemple, l'accord de phase par biréfringence[15] ou le quasi-accord de phase[16, 22]. La cavité optique peut être résonnante sur un, deux, ou trois des faisceaux impliqués, diminuant à chaque fois le seuil d'oscillation. Dans de tels systèmes, une réduction du bruit de l'ordre de 90% sous la limite quantique standard est accessible[23, 24].

Pour faciliter les avancées en information quantique, il est désirable d'avoir des sources quantiques entièrement intégrées, ce vers quoi se sont dirigés plusieurs groupes de recherche [25–27], notamment en cherchant à obtenir l'oscillation paramétrique dans des structures de semiconducteurs[28, 29]. Dans les microcavités, une étape déterminante a été franchie quand SAVVIDIS *et al.* [30] et STEVENSON *et al.* [31] ont observé l'amplification paramétrique et l'oscillation paramétrique. Ainsi, lorsque le système est excité sur la branche de polariton basse à un angle non nul, désigné comme l'"angle magique" dans la littérature, les interactions paramétriques issues des forces coulombiennes entre excitons convertissent les polaritons de pompe en polaritons "signal", en bas de bande, et "complémentaire", à grand angle. Dans le processus, l'énergie et le vecteur d'onde dans le plan des couches sont conservés. Les résultats ont été interprétés en termes d'amplification et d'oscillation paramétrique du troisième ordre (en  $\chi^{(3)}$ ), triplement résonnante, selon des modèles théoriques classiques[32] et quantiques[33, 34].

Dans les microcavités planaires, l'oscillation paramétrique n'est possible que dans des conditions où les polaritons complémentaires ont une forte composante excitonique, de sorte que les faisceaux sortants sont très déséquilibrés en intensité, ce qui réduit leur capacité à être quantiquement corrélés. De plus, le pompage doit être réalisé à un angle d'incidence non nul, ce qui limite les possibilités d'intégration du dispositif. Enfin, l'échantillon doit être maintenu à une température cryogénique pour préserver le couplage fort qui est indispensable à l'accord de phase. Dans cette thèse, nous nous sommes intéressés à la structuration de microcavités, qui permet d'obtenir l'oscillation dans une configuration où la pompe se trouve en incidence

normale, où le couplage fort n'est plus une condition nécessaire, et où le signal et le complémentaire sont équilibrés en intensité. Ce travail s'inscrit dans la continuité de la mise en évidence de l'oscillation paramétrique interbranche dans des cavités triples[35–37], dans des fils photoniques[38–40] et dans des micropiliers[41].

Nous étudions dans cette thèse deux approches de structuration des microcavités. Dans la première, des microcavités sont gravées en forme de fils. La gravure crée un confinement latéral de la lumière, qui conduit à une quantification et à l'apparition d'une collection de modes de polaritons[39]. Nous avons montré dans ces fils photoniques l'existence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie. Nous avons étudié les caractéristiques de cette émission, son comportement en polarisation et en puissance, que nous confrontons à un modèle de polaritons en interaction. Nous avons également mesuré les spectres de bruit des faisceaux générés et étudié les corrélations d'intensité en comparaison avec un modèle de fluctuations. La seconde approche de structuration que nous étudions est le couplage de plusieurs microcavités planaires empilées[36]. La transmission non-nulle du miroir intermédiaire permet l'apparition de modes délocalisés sur toute la structure. Nous présentons une étude détaillée du comportement en polarisation de l'oscillation paramétrique optique dégénérée en énergie dans ces systèmes. Enfin, nous présentons l'analyse d'une microcavité couplée conçue pour la génération paramétrique optique à température ambiante.

Tout d'abord, le **chapitre 1** présente les phénomènes d'optique non-linéaire qui ont lieu dans les microcavités. Nous présentons tout d'abord, dans un but pédagogique, le formalisme qui décrit les phénomènes paramétriques dans le cadre général de la propagation d'un faisceau dans un milieu non-linéaire. Nous introduisons ainsi des processus qui sont tous observés dans les microcavités : l'effet Kerr optique, l'absorption non-linéaire, l'amplification et l'oscillation paramétrique. Ensuite, nous présentons les microcavités de semiconducteurs, en commençant par la description des excitons dans les puits quantiques, puis en abordant le couplage lumière-matière et les polaritons de microcavités. Nous précisons l'état de l'art de l'optique non-linéaire dans les microcavités. Enfin, nous présentons la problématique de la réduction du bruit quantique dans le cadre de faisceaux couplés dans un milieu non-linéaire, ce qui introduit les possibilités de corrélations quantiques dans les microcavités.

Le **chapitre 2** est consacré à la description des techniques expérimentales utilisées lors de ce travail de thèse. On présentera notamment les montages optiques de visualisation de l'émission des microcavités. Le montage permet de résoudre cette émission angulairement, en l'observant dans le plan de Fourier d'une lentille. On décrira également le montage de mesure du bruit de photons en insistant sur l'optimisation des détecteurs.

Le **chapitre 3** présente l'étude détaillée de l'oscillation paramétrique dans les fils photoniques. Nous analysons les propriétés spectrales de ces microcavités gravées, en détaillant l'effet du confinement latéral sur les états propres de la structure. Nous mettons ensuite en évidence l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie. Nous vérifions son comportement spectral qui atteste de l'accord de phase entre les faisceaux. Nous étudions le comportement en puissance du phénomène et la variation du seuil d'oscillation en fonction de désaccord polariton-exciton. Ces résultats sont confrontés à un modèle de polaritons en interaction, analogue au modèle des ondes couplées présenté dans le chapitre 1, adapté à la situation du couplage fort. Enfin, nous présentons les mesures de bruit de photon sur les faisceaux générés, qui présentent une forte corrélation classique et un important excès de bruit sur la

différence des intensités. Ces résultats sont comparés au modèle de polaritons en interaction, étendu pour l'étude des fluctuations.

Le **chapitre 4** étudie l'existence de l'oscillation paramétrique dans une microcavité multiple à basse température, puis à température ambiante. À basse température, nous observons le phénomène d'oscillation paramétrique dégénéré en énergie, puis nous démontrons par des mesures de corrélations qu'il s'agit bien d'une diffusion paramétrique. La suite du chapitre est consacrée à l'oscillation à température ambiante. Un échantillon prototype de microcavité double nous permet d'étudier les propriétés spectrales de la structure, et en particulier le comportement non-linéaire de l'exciton. À partir de ces mesures, nous modélisons la non-linéarité de l'exciton en nous appuyant sur un modèle de système à deux niveaux, qui nous permettra d'interpréter ensuite les mesures réalisées en excitation résonnante. Enfin, à la lumière de ce modèle, nous examinerons les conditions nécessaires à l'observation du régime d'oscillation paramétrique à température ambiante, et nous nous efforcerons de prévoir les caractéristiques de l'échantillon qui permettra de les atteindre.

Enfin, le **chapitre 5** détaille l'amplification paramétrique résolue en polarisation dans une microcavité planaire triple. Les mesures de l'efficacité de la diffusion paramétrique nous permettent d'évaluer le rapport des potentiels d'interaction  $V_1$  et  $V_2$  entre polaritons de polarisations circulaires identiques ou opposées, respectivement. Nous présentons les caractéristiques structurales et spectrales de la microcavité triple utilisée, puis les propriétés de la diffusion paramétrique observée dans une configuration pompe-sonde dégénérée en énergie. Nous nous concentrons finalement sur le comportement de l'intensité du faisceau complémentaire. Un modèle de polaritons en interaction dans une configuration pompe-sonde permet d'interpréter les mesures résolues en polarisation et finalement d'évaluer le rapport  $V_2/V_1$  sur une large gamme de désaccords polariton-exciton.

## Références

1. HALL, R. N. *et al.* Coherent Light Emission From GaAs Junctions. *Physical Review Letters* **9**, 366 (1962).
2. ALFEROV, Z. *et al.* Investigation of the influence of the AlAs/GaAs heterostructure parameters on the laser threshold current and the realization of continuous emission at room temperature. *Sov. Phys.-Semicond.* **4**, 1573–1575 (1971).
3. YOKOYAMA, H. Physics and Device Applications of Optical Microcavities. *Science* **256**, 66–70 (1992).
4. SODA, H. *et al.* GaInAsP/InP Surface Emitting Injection Lasers. *Japanese Journal of Applied Physics* **18**, 2329–2330 (1979).
5. KOYAMA, F. *et al.* Room-temperature continuous wave lasing characteristics of a GaAs vertical cavity surface-emitting laser. *Applied Physics Letters* **55**, 221 (1989).
6. WEISBUCH, C. *et al.* Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity. *Physical Review Letters* **69**, 3314 (1992).

7. HOUDRÉ, R. *et al.* Measurement of Cavity-Polariton Dispersion Curve from Angle-Resolved Photoluminescence Experiments. *Physical Review Letters* **73**, 2043 (1994).
8. STANLEY, R. P. *et al.* Cavity-polariton photoluminescence in semiconductor microcavities : Experimental evidence. *Physical Review B* **53**, 10995 (1996).
9. SERMAGE, B. *et al.* Time-resolved spontaneous emission of excitons in a microcavity : Behavior of the individual exciton-photon mixed states. *Physical Review B* **53**, 16516 (1996).
10. BLOCH, J. & MARZIN, J. Y. Photoluminescence dynamics of cavity polaritons under resonant excitation in the picosecond range. *Physical Review B* **56**, 2103 (1997).
11. TASSONE, F. *et al.* Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons. *Physical Review B* **56**, 7554 (1997).
12. MÜLLER, M. *et al.* Dynamics of the cavity polariton in CdTe-based semiconductor microcavities : Evidence for a relaxation edge. *Physical Review B* **62**, 16886 (2000).
13. DANG, L. S. *et al.* Stimulation of Polariton Photoluminescence in Semiconductor Microcavity. *Physical Review Letters* **81**, 3920 (1998).
14. KASPRZAK, J. *et al.* Bose-Einstein condensation of exciton polaritons. *Nature* **443**, 409–414 (2006).
15. SHEN, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley-Interscience, 2002).
16. ARMSTRONG, J. A. *et al.* Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Physical Review* **127**, 1918 (1962).
17. SCULLY, M. O. & ZUBAIRY, M. S. *Quantum optics* (Cambridge University Press, 1997).
18. WALLS, D. F. & MILBURN, G. J. *Quantum optics* (Springer, 2008).
19. JENNEWEIN, T. *et al.* Quantum Cryptography with Entangled Photons. *Physical Review Letters* **84**, 4729 (2000).
20. GISIN, N. *et al.* Quantum cryptography. *Reviews of Modern Physics* **74**, 145 (2002).
21. SANTORI, C. *et al.* Indistinguishable photons from a single-photon device. *Nature* **419**, 594–597 (2002).
22. BOSENBERG, W. R. *et al.* 93% pump depletion, 3.5-W continuous-wave, singly resonant optical parametric oscillator. *Optics Letters* **21**, 1336–1338 (1996).
23. MERTZ, J. *et al.* Improvements in the observed intensity correlation of optical parametric oscillator twin beams. *Optics Letters* **16**, 1234–1236 (1991).
24. TEJA, J. & WONG, N. Twin-beam generation in a triply resonant dual-cavity optical parametric oscillator. *Optics Express* **2**, 65–71 (1998).
25. MOREAU, E. *et al.* Single-mode solid-state single photon source based on isolated quantum dots in pillar microcavities. *Applied Physics Letters* **79**, 2865 (2001).
26. TANZILLI, S. *et al.* Highly efficient photon-pair source using periodically poled lithium niobate waveguide. *Electronics Letters* **37**, 26–28 (2001).
27. LANCO, L. *et al.* Semiconductor Waveguide Source of Counterpropagating Twin Photons. *Physical Review Letters* **97**, 173901 (2006).

28. HAIDAR, R. *et al.* Optical parametric oscillation in microcavities based on isotropic semiconductors : a theoretical study. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **39**, 569–576 (2003).
29. VODOPYANOV, K. L. *et al.* Optical parametric oscillation in quasi-phase-matched GaAs. *Optics Letters* **29**, 1912–1914 (2004).
30. SAVVIDIS, P. G. *et al.* Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier. *Physical Review Letters* **84**, 1547 (2000).
31. STEVENSON, R. M. *et al.* Continuous Wave Observation of Massive Polariton Redistribution by Stimulated Scattering in Semiconductor Microcavities. *Physical Review Letters* **85**, 3680 (2000).
32. WHITTAKER, D. M. Classical treatment of parametric processes in a strong-coupling planar microcavity. *Physical Review B* **63**, 193305 (2001).
33. CIUTI, C. *et al.* Theory of the angle-resonant polariton amplifier. *Physical Review B* **62**, R4825 (2000).
34. CIUTI, C. *et al.* Theory of polariton parametric interactions in semiconductor microcavities. *Semiconductor Science and Technology* **18**, S279–S293 (2003).
35. DIEDERICHS, C. & TIGNON, J. Design for a triply resonant vertical-emitting micro-optical parametric oscillator. *Applied Physics Letters* **87**, 251107–3 (2005).
36. DIEDERICHS, C. *et al.* Parametric oscillation in vertical triple microcavities. *Nature* **440**, 904–907 (2006).
37. DIEDERICHS, C. *et al.* Parametric generation of twin photons in vertical triple microcavities. *Comptes Rendus Physique* **8**, 1198–1204 (2007).
38. CIUTI, C. Branch-entangled polariton pairs in planar microcavities and photonic wires. *Physical Review B* **69**, 245304 (2004).
39. DASBACH, G. *et al.* dans *Quantum Electronics and Laser Science Conference, 2005. QELS '05* 83–85 Vol. 1 (2005).
40. DASBACH, G. *et al.* Polarization inversion via parametric scattering in quasi-one-dimensional microcavities. *Physical Review B* **71**, 161308 (2005).
41. FERRIER, L. *et al.* Polariton parametric oscillation in a single micropillar cavity. *Applied Physics Letters* **97**, 031105 (2010).

# Chapitre 1

## Optique non-linéaire en microcavité

Les phénomènes non-linéaires résonnants que l'on observe dans les microcavités de semiconducteurs sont très riches. Dans un but pédagogique et pour fixer un certain nombre de notations, nous introduirons ici progressivement les concepts qui permettent de comprendre les effets qui peuvent être observés dans les microcavités, en nous efforçant d'utiliser les modèles les plus simples possibles. Nous décrivons d'abord d'une manière générale les phénomènes paramétriques, en adoptant une approche classique. On retrouvera l'empreinte de ces résultats dans les modèles d'optique non-linéaire en microcavité qui suivront dans ce manuscrit. Puis nous ferons le lien avec le puits quantique, élément constitutif de la microcavité, en tant que milieu non-linéaire. Par la suite, nous présenterons le deuxième élément de la microcavité, le résonateur formé de miroirs de Bragg. Enfin, on abordera quelques éléments clés de la théorie des fluctuations du champ électromagnétique, qui ont fait l'objet d'études expérimentales approfondies pendant cette thèse, et sont le point de départ de plusieurs applications potentielles.

### 1.1 Traitement classique de la propagation dans les milieux non-linéaires

Comme nous le verrons par la suite, la microcavité est tout à fait l'analogue nanostructuré d'un objet d'optique non-linéaire usuel, l'*oscillateur paramétrique optique* (OPO). L'OPO est composé d'un milieu non-linéaire placé à l'intérieur d'un résonateur optique. L'étude de la propagation des ondes électromagnétiques dans ce système aboutit à des phénomènes non-linéaires dont les applications sont tout à fait pratiques : l'OPO une source de lumière accordable [1], qui peut produire des faisceaux comprimés [2, 3]. Dans cette première partie, on abordera ces phénomènes de façon classique et en raisonnant à partir des valeurs moyennes, la question des fluctuations sera abordée dans la partie 1.6.

### 1.1.1 Polarisation non-linéaire

Les équations de Maxwell dans un milieu matériel sans courant aboutissent à l'équation de propagation du champ électrique  $\vec{E}$  [1, 4] :

$$\Delta \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.1)$$

Connaître la relation entre  $\vec{E}$  et la polarisation  $\vec{P}$  du milieu permet de résoudre cette équation de propagation. En se plaçant dans la situation où le champ appliqué est petit devant les champs caractéristiques dans le milieu, par exemple les champs interatomiques dans un milieu solide, on peut alors faire un développement de la polarisation  $P$  :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \vec{P}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{P}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (1.2)$$

Chaque composante  $\vec{P}^{(n)}$  est une fonction d'ordre  $n$  par rapport au champ  $\vec{E}$ , locale, mais éventuellement non-instantanée et tensorielle. En passant à la transformée de Fourier, ces polarisations s'écrivent :

$$\vec{P}^{(n)}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(n)}(\vec{r}, \omega; \omega_1, \dots, \omega_n) \otimes \vec{E}_1(\vec{r}, \omega_1) \dots \vec{E}_n(\vec{r}, \omega_n) \quad (1.3)$$

où  $\chi^{(n)}(\vec{r}, \omega; \omega_1, \dots, \omega_n)$  est le tenseur de susceptibilité d'ordre  $n$ .

Plusieurs approches permettent de déterminer l'expression des éléments de ce tenseur. Par exemple, on peut modéliser le milieu par un ensemble de  $N$  systèmes quantiques à  $n$  niveaux d'énergies, couplé à un réservoir introduisant la relaxation. Dans ce modèle, on peut expliciter les équations d'évolution de la matrice densité  $\rho$  ainsi que l'expression du moment dipolaire  $\mu$  d'un système. On remonte alors à la polarisation non-linéaire du milieu en sachant qu'elle est définie comme étant le moment dipolaire moyen, par unité de volume. Dans la suite, on abordera le cas du système à deux niveaux.

### 1.1.2 Polarisation du système à deux niveaux

Un exemple simple de milieu non-linéaire est le système à deux niveaux [5]. Dans le contexte de cette thèse, la phénoménologie de la saturation du système à deux niveaux nous permet de comprendre les effets de saturation du puits quantique, et nous utiliserons ces résultats notamment au chapitre 4 qui traitera du comportement de la microcavité à température ambiante.

Notons  $a$  et  $b$  les niveaux du système, et supposons qu'il est soumis à un champ  $\vec{E}$  permanent, monochromatique, de pulsation  $\omega$ , comme l'illustre la figure 1.1. Dans ce cas, les équations d'évolution de la matrice densité  $\rho$  permettent d'écrire la susceptibilité totale (incluant tous les ordres) [5] :

$$\chi(\omega, E) = -\frac{\alpha_0}{4\pi \frac{\omega_{ba}}{c}} \frac{\Delta - i}{1 + \Delta^2 + \frac{|E|^2}{|E_S^0|^2}} \quad (1.4)$$

Ici  $\alpha_0$  correspond au coefficient d'absorption linéaire à la résonance,  $\omega_{ba}$  est la fréquence de transition du système,  $E_S^0$  est le champ de saturation à la résonance. On a noté  $\Delta = \frac{\omega - \omega_{ba}}{\Gamma_{ba}}$ , où  $\Gamma_{ba}$  est le taux de relaxation de la population de l'état  $b$ .  $\Delta$  s'interprète comme le désaccord entre le champ et la résonance du système, normalisé par le taux de relaxation des cohérences.

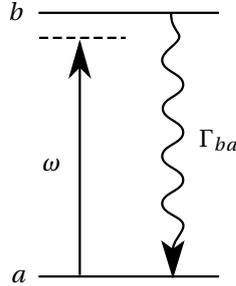


FIGURE 1.1 – Excitation quasi-résonante d'un système à 2 niveaux, et processus de relaxation.

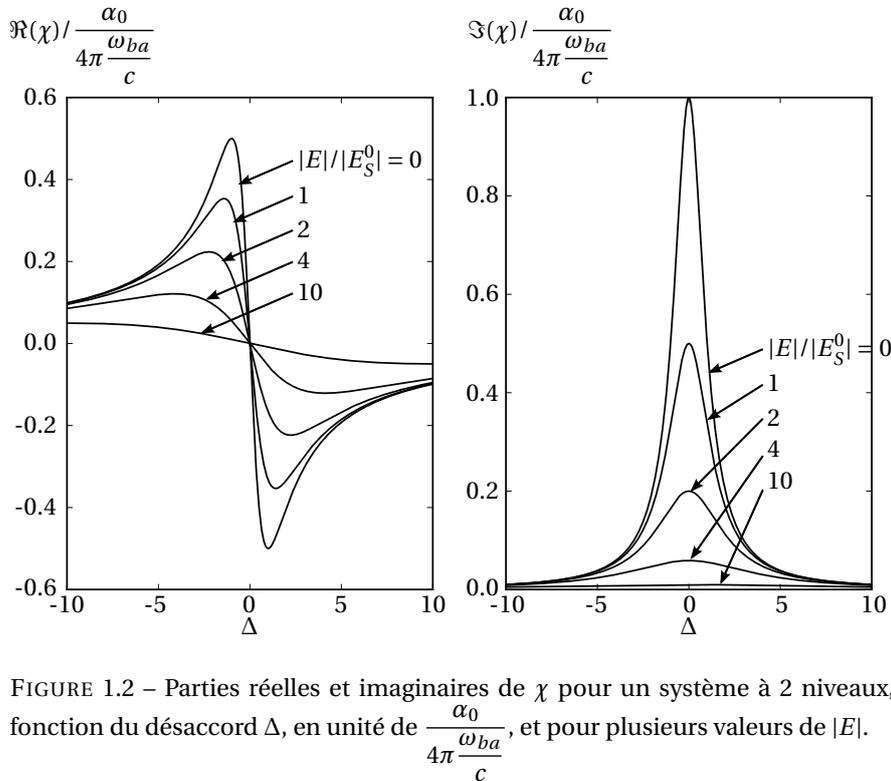


FIGURE 1.2 – Parties réelles et imaginaires de  $\chi$  pour un système à 2 niveaux, en fonction du désaccord  $\Delta$ , en unité de  $\frac{\alpha_0}{4\pi \frac{\omega_{ba}}{c}}$ , et pour plusieurs valeurs de  $|E|$ .

La figure 1.2 illustre l'allure de  $\chi$ . Ainsi, quelle que soit l'intensité du champ appliqué sur le système, la partie réelle de  $\chi$  a une forme dispersive standard, tandis que sa partie imaginaire, qui donne l'absorption, a une allure lorentzienne. Quand l'intensité  $|E|^2$  augmente, les formes spectrales s'élargissent, et l'absorption diminue, ce qui correspond à la saturation de la transition entre les deux niveaux. On en déduit au passage une signification du champ de saturation  $E_S^0$  : l'absorption du système excité à la résonance par un champ d'amplitude  $E_S^0$  est la moitié de l'absorption à champ très faible.

À partir de l'expression de la susceptibilité  $\chi$  totale, il est facile de calculer chaque ordre de susceptibilité non-linéaire en développant selon les puissances du champ

E. Par exemple, la susceptibilité linéaire vaut :

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{\alpha_0}{4\pi} \frac{\omega_{ba}}{c} \frac{\Delta - i}{1 + \Delta^2} \quad (1.5)$$

Aux ordres supérieurs, on note que seules les susceptibilités d'ordres impairs du système à deux niveaux sont non-nulles, et par exemple la susceptibilité du troisième ordre vaut :

$$\chi^{(3)}(\omega) = \frac{\alpha_0}{12\pi} \frac{\omega_{ba}}{c} \frac{\Delta - i}{(1 + \Delta^2)^2} \frac{1}{|E_S^0|^2} \quad (1.6)$$

Enfin, notons qu'on peut intégrer tous les termes d'ordres supérieurs à 3 dans un  $\chi^{(3)}$  "effectif" [6], qui lui-même sature, ce qui est expérimentalement significatif :

$$\chi_{eff}^{(3)}(\omega, E) = \frac{\alpha_0}{12\pi} \frac{\omega_{ba}}{c} \frac{\Delta - i}{1 + \Delta^2} \frac{1}{|E_S^0|^2} \frac{1}{1 + \Delta^2 + \frac{|E|^2}{|E_S^0|^2}} \quad (1.7)$$

Notons que les formules précédentes pour la susceptibilité ne s'appliquent pas au cas où plusieurs champs de fréquences différentes sont incidents au système à deux niveaux [5]. Un nouveau calcul à partir des équations d'évolution de la matrice densité permet d'obtenir les susceptibilités, qui présentent des résonances supplémentaires correspondant aux "états habillés" du système à deux niveaux. On peut par contre se servir des susceptibilités établies ici dans le cas d'un mélange dégénéré, c'est-à-dire si le champ incident est une superposition de plusieurs ondes de même fréquence.

### 1.1.3 Applications au second ordre, $\chi^{(2)}$

Évoquons quelques phénomènes apparaissant dans les milieux qui peuvent être décrits par une susceptibilité d'ordre 2. Ceci permettra d'introduire dans un cadre clair les concepts d'amplification paramétrique et d'oscillation paramétrique, ainsi que l'accord de phase. Dans la partie suivante, on réutilisera et étendra ces résultats pour aborder le cas du troisième ordre qui correspond aux effets observés dans cette thèse.

Notons que, pour des raisons de symétrie, tous les milieux centro-symétriques présentent un  $\chi^{(2)}$  nul [1]. Pour ce qui est des semiconducteurs massifs, la structure cristalline permet de déduire l'existence ou non d'un  $\chi^{(2)}$ . Par exemple, la plupart des cristaux III-V, comme Ga, Al ou In composés avec P, As ou Sb, adoptent la structure de la blende, et à ce titre ne sont pas centro-symétriques et possèdent donc un  $\chi^{(2)}$  non nul. D'autres cristaux III-V, comme GaN, ou II-VI, comme ZnO ou CdSe, sont de structure wurtzite, ne possèdent pas non plus de centre d'inversion et ont donc un  $\chi^{(2)}$  non nul [7]. Par exemple, un puits quantique symétrique, comme ceux que nous décrirons dans la section suivante, a un  $\chi^{(2)}$  nul (reste le  $\chi^{(2)}$  du cristal sous-jacent). Nous présentons néanmoins les processus en  $\chi^{(2)}$  en guise d'introduction.

**Doublage de fréquence et notion d'accord de phase** Considérons un champ  $E$  (scalaire) de fréquence  $\omega$  se propageant dans le cristal décrit par une susceptibilité d'ordre 2. Le champ  $E$  s'écrit  $E(z, t) = E(z) \cos(\omega t)$ . En notation complexe :  $E(z, t) =$

$\frac{\mathcal{E} + \mathcal{E}^*}{2}$  avec  $\mathcal{E}(z, t) = \mathcal{E}(z)e^{i\omega t}$ . La polarisation (scalaire) au second ordre s'écrit [1, 4] :

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left( \frac{\mathcal{E} + \mathcal{E}^*}{2} \right)^2 \quad (1.8)$$

$$= \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{4} (\mathcal{E}^2 + \mathcal{E}^{*2} + 2\mathcal{E}\mathcal{E}^*) \quad (1.9)$$

Les deux premiers termes correspondent à une polarisation oscillant à  $2\omega$  : c'est le *doublage de fréquence*, ou encore la *génération de seconde harmonique* (figure 1.3). Le dernier terme est statique, c'est le *redressement optique*. Gardons uniquement le premier terme, et définissons encore l'enveloppe lentement variable  $\mathcal{A}(z)$  par  $\mathcal{E}(z) = \mathcal{A}(z)e^{ikz}$ . La polarisation complexe s'écrit alors :

$$\mathcal{P}^{(2)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{E}^2 = \frac{\epsilon_0 \chi^{(2)}}{2} \mathcal{A}(z)^2 e^{2ikz} \quad (1.10)$$

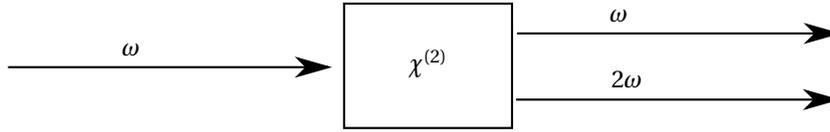


FIGURE 1.3 – Schéma de principe de l'effet de doublage de fréquence.

Cette polarisation entraîne l'apparition d'un champ oscillant à  $\omega_2 = 2\omega$ , dont l'enveloppe sera notée  $\mathcal{A}_2(z)$ . Ce champ vérifie l'équation de propagation, qui s'écrit après simplifications (on note  $n_2$  l'indice de réfraction à la fréquence  $\omega_2$ ) :

$$\frac{d\mathcal{A}_2}{dz} = \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} \mathcal{A}(z)^2 e^{i(2k-k_2)z} \quad (1.11)$$

Supposons de plus que les phénomènes non-linéaires sont suffisamment faibles et qu'il n'y a pas d'absorption pour considérer que le champ incident est constant dans le milieu :  $\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}(0)$ . On peut alors résoudre l'équation de propagation :

$$\mathcal{A}_2(z) = i \frac{i\omega_2 \chi^{(2)}}{4n_2 c} \mathcal{A}^2 \frac{e^{i(2k-k_2)z} - 1}{i(2k - k_2)} \quad (1.12)$$

On en déduit l'intensité de la seconde harmonique :

$$I_2(z) \propto |\mathcal{A}_2(z)|^2 = \frac{\omega_2^2 |\chi^{(2)}|^2}{(4n_2 c)^2} |\mathcal{A}|^4 \frac{4 \sin^2((2k - k_2)z/2)}{(2k - k_2)^2} \quad (1.13)$$

On note que l'intensité de la seconde harmonique varie simplement comme  $|\chi^{(2)}|^2$ . En fonction de la distance de propagation  $z$  par contre, cette intensité est périodique dès que  $\Delta k = 2k - k_2$  est non-nul. C'est ce qu'on appelle le problème de l'*accord de phase*. La demi-période de cette variation est appelée *longueur de cohérence* et vaut  $L_C = \frac{\pi}{\Delta k}$ . Au-delà de cette longueur, l'intensité  $I_2(z)$  cesse d'augmenter parce que le champ créé localement interfère destructivement avec le champ qui a été créé plus tôt.  $\Delta k$  provient typiquement de la dispersion de l'indice de réfraction. Ce n'est qu'en s'affranchissant de ce problème qu'on peut rendre la production

de seconde harmonique efficace. Quand l'accord de phase est réalisé (par exemple grâce à l'accord de phase par biréfringence), on a  $\Delta k = 0$  et l'expression de l'intensité devient<sup>1</sup> :

$$I_2(z) \propto \frac{\omega_2^2 |\chi^{(2)}|^2}{(4n_2c)^2} |\mathcal{A}|^4 z^2 \quad (1.14)$$

En résumé, le doublage de fréquence (et le redressement optique) apparaît dès qu'un faisceau se propage dans un milieu en  $\chi^{(2)}$ . Le phénomène se produit avec efficacité quand la condition d'accord de phase est réalisée.

**Différence de fréquences et amplification paramétrique** Examinons le cas où deux faisceaux de fréquences  $\omega_1$  et  $\omega_2$  se propagent dans le cristal. En plus des phénomènes précédents (doublage et redressement), la non-linéarité en  $\chi^{(2)}$  va créer deux composantes de polarisation non-linéaire, dont les fréquences seront respectivement la différence  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$  et la somme  $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2$ . Si par ailleurs la condition d'accord de phase est réalisée pour la différence uniquement ( $\Delta k = k_1 - k_2 - k_3$  petit devant l'inverse de la longueur d'interaction), on peut traiter le problème en ne considérant que les trois champs  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  et leurs combinaisons qui respectent l'accord de phase (figure 1.4). Ainsi, la polarisation d'ordre 2 s'écrit :

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \chi^{(2)} \left( \frac{\mathcal{E}_1 + \mathcal{E}_1^* + \mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_3 + \mathcal{E}_3^*}{2} \right)^2 \quad (1.15)$$

$$= \epsilon_0 \frac{\chi^{(2)}}{4} (\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^* + \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_3^* + \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3) + c.c. \quad (1.16)$$

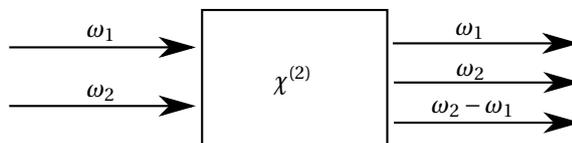


FIGURE 1.4 – Schéma de principe de l'effet de différence de fréquences

Dans ce cas, les équations de propagation pour les trois fonctions enveloppes  $\mathcal{A}_1$ ,  $\mathcal{A}_2$  et  $\mathcal{A}_3$  forment un système couplé qu'on peut écrire sous la forme suivante :

$$\frac{d\alpha_1}{dz} = i\xi \alpha_2 \alpha_3 e^{-i\Delta k z} \quad (1.17a)$$

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_3^* e^{i\Delta k z} \quad (1.17b)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = i\xi \alpha_1 \alpha_2^* e^{i\Delta k z} \quad (1.17c)$$

$$\text{avec } \alpha_i(z) = \sqrt{\frac{n_i c \epsilon_0}{2 \hbar \omega_i}} \mathcal{A}_i(z) \text{ et } \xi = \chi^{(2)} \sqrt{\frac{\hbar \omega_1 \omega_2 \omega_3}{2 \epsilon_0 c^3 n_1 n_2 n_3}}.$$

À ce stade, on peut montrer simplement à partir des équations précédentes que les flux de photons et la puissance totale sont conservés :  $\frac{d|\alpha_2|^2}{dz} = \frac{d|\alpha_3|^2}{dz} = -\frac{d|\alpha_1|^2}{dz}$

1. Cette expression n'est valable que pour des distances  $z$  petites devant une longueur effective  $L_{eff}$ , qui apparaît quand on tient compte de la possibilité pour l'onde à la fréquence  $\omega_2$  de régénérer l'onde de fréquence  $\omega_1$ , par le processus de différence de fréquences.

et  $\frac{d}{dz}(\hbar\omega_1|\alpha_1|^2 + \hbar\omega_2|\alpha_2|^2 + \hbar\omega_3|\alpha_3|^2) = 0$ . Ceci est essentiel pour interpréter le phénomène : la puissance totale se conserve, donc la non-linéarité n'a pour effet que de transférer de l'énergie entre les faisceaux. Plus précisément, en terme de photons, le processus correspond à la destruction d'un photon de fréquence  $\omega_1$  et à la création d'une paire de photons aux fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$ . Cette description en termes de production de paires de photons se retrouve jusque dans l'expression des fluctuations des intensités et elle est à la base du concept de corrélations quantiques, qui nous motive pour réaliser une source paramétrique en microcavités et que nous approfondirons dans la partie 1.6.

Dans le cas particulier où l'accord de phase est parfaitement réalisé ( $\Delta k = 0$ ) et si on suppose que le faisceau de fréquence  $\omega_1$  est constant, parce que beaucoup plus puissant que les deux autres faisceaux (on les appelle alors respectivement pompe, signal et complémentaire), les équations pour le signal et le complémentaire forment un système simple (avec  $g = i\xi\alpha_1$ ) :

$$\frac{d\alpha_2}{dz} = g\alpha_3^* \quad (1.18a)$$

$$\frac{d\alpha_3}{dz} = g\alpha_2^* \quad (1.18b)$$

Si enfin  $\alpha_3(0) = 0$ , ce qui correspond à la situation où on envoie simplement une pompe et un signal sur le cristal, ce système admet les solutions suivantes :

$$\alpha_2(z) = \alpha_2(0) \cosh(gz) \quad (1.19a)$$

$$\alpha_3(z) = \alpha_2^*(0) \sinh(gz) \quad (1.19b)$$

Ainsi le faisceau signal se voit amplifié, son intensité variant comme  $|\cosh(gz)|^2$  avec la distance  $z$ , c'est ce qu'on appelle *l'amplification paramétrique*. Un faisceau complémentaire est par ailleurs créé, sa fréquence est la différence entre celles de la pompe et du signal.<sup>2</sup>

**Avec un résonateur : Oscillation paramétrique** Il est apparu ci-dessus que le milieu en  $\chi^{(2)}$  pompé par une onde de fréquence  $\omega_1$  se comporte comme un milieu à gain pour les ondes de fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$ . Par analogie avec l'effet laser, on s'attend donc à observer un phénomène d'oscillation quand ce système est placé à l'intérieur d'un résonateur optique accordé sur  $\omega_2$  et/ou  $\omega_3$ . Il s'agit de *l'oscillation paramétrique optique* (OPO).

Illustrons le comportement d'un tel oscillateur composé d'un milieu en  $\chi^{(2)}$  de taille  $L$  placé dans un résonateur en anneau<sup>3</sup>, accordé sur les fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$  (figure 1.5). Un OPO de ce type est dit *doublément résonnant*. L'oscillation apparaît quand le gain lors d'un passage dans le cristal compense les pertes lors d'un tour dans le résonateur. Ceci équivaut aux équations suivantes :

$$\alpha_2(L)r_2e^{i\phi_2} = \alpha_2(0) \quad (1.20a)$$

$$\alpha_3(L)r_3e^{i\phi_3} = \alpha_3(0) \quad (1.20b)$$

2. Ces expressions de  $\alpha_2(z)$  et  $\alpha_3(z)$  semblent indiquer qu'il n'y a plus autant de photons créés dans le signal et le complémentaire, mais ce n'est qu'un artefact de la simplification que l'on a fait en supposant  $\alpha_1(z)$  constant.

3. Contrairement à une cavité planaire, un résonateur en anneau ne permet la circulation du champ que dans une direction seulement, ce qui permet de négliger les réflexions aux interfaces, et donc de simplifier considérablement le modèle

où  $r_{2,3}$  et  $\phi_{2,3}$  désignent respectivement les coefficients de réflexion en amplitude du résonateur et la phase accumulée à cause de la propagation dans la cavité.  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  évoluent dans le cristal selon les équations 1.19a et 1.19b.

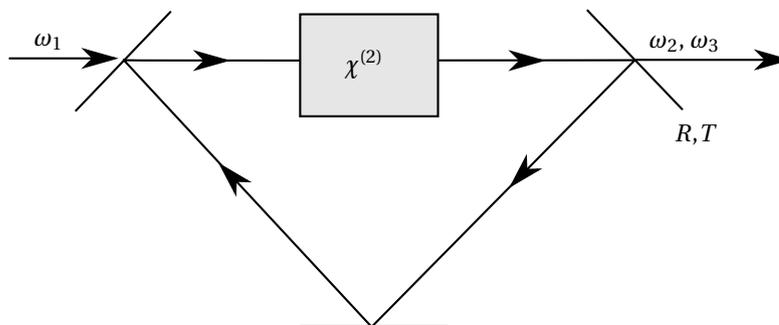


FIGURE 1.5 – Oscillateur paramétrique optique construit à partir d'un cristal en  $\chi^{(2)}$  inséré dans un résonateur accordé sur les fréquences  $\omega_2$  et  $\omega_3$ .

Cette condition d'oscillation peut être explicitée dans la situation suivante : Supposons comme dans le paragraphe précédent que la condition d'accord de phase est réalisée ( $\Delta_k = 0$ ) et que la pompe est d'amplitude constante. Si le gain paramétrique  $\xi$  présenté dans le paragraphe précédent est faible, on peut linéariser l'évolution spatiale des champs :  $\alpha_i(z) = \alpha_i(\frac{L}{2}) + (z - \frac{L}{2}) \frac{d\alpha_i}{dz} = \alpha_i(\frac{L}{2}) + (z - \frac{L}{2}) g \alpha_j^*$  ; si la réflectivité du résonateur est grande, on peut écrire  $r_i = 1 - \frac{T_i}{2}$  où  $T_i$  est le coefficient de transmission en intensité du résonateur ; enfin, si la cavité est proche de la résonance, le déphasage se réécrit  $e^{i\phi_i} \approx 1 + i\delta_i$  où  $\delta_i$  est appelé *désaccord* et est petit devant 1. Supposons finalement que les transmissions sont identiques pour le signal et le complémentaire :  $T_2 = T_3 = T$ . Alors, le système {1.20a, 1.20b} a des solutions non-nulles dès que  $\delta_2 = \delta_3 = \delta$  et que :

$$|\xi|^2 L^2 |\alpha_{1,seuil}|^2 = 4\delta^2 + T^2 \quad (1.21)$$

Ceci définit le seuil d'oscillation, c'est-à-dire l'intensité de pompe au-delà de laquelle le système produit spontanément des champs  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  non-nuls. Ici, cette intensité vaut  $I_{1,seuil} = |\mathcal{A}_{1,seuil}|^2 = \frac{2\hbar\omega_1}{n_1 c \epsilon_0} \frac{\delta^2 + T^2/4}{\xi^2 L^2}$

Ainsi, le seuil d'oscillation résulte clairement un compromis entre le gain, décrit par  $\xi L$ , et les pertes, décrites par  $T$ . Le seuil optimal est par ailleurs atteint quand le désaccord du résonateur pour le signal et le complémentaire est nul, c'est-à-dire quand le résonateur est parfaitement accordé avec chacun des deux faisceaux. Si le résonateur permet à plusieurs couples de signal/complémentaire d'apparaître, c'est le couple pour lequel  $\delta$  est le plus petit qui oscillera le premier. Cette dernière remarque est importante dans le contexte de cette thèse, puisque dans les microcavités planaires couplées (chapitres 4 et 5), le résonateur présente une symétrie de révolution de sorte qu'une infinité de couples signal/complémentaire au même  $\delta$  sont candidats à l'oscillation. Le couple dont le rapport gain/pertes est le plus favorable est sélectionné pour l'oscillation.

Le résonateur peut également être résonant pour la pompe, on parle alors d'OPO *triplement résonant*. Dans ce cas, l'intensité  $|\alpha_1|^2$  de la pompe dans la cavité est

égale, au premier ordre, à l'intensité  $|a_1^{in}|^2$  incidente (hors de la cavité) multipliée par  $\frac{4}{T_1}$ . Le seuil de l'OPO triplement résonant est donc abaissé d'un facteur  $\frac{T_1}{4}$  par rapport à l'OPO doublement résonnant. Ceci est important, puisque dans les microcavités telles que nous les étudions dans cette thèse, l'oscillation est effectivement triplement résonnante.

#### 1.1.4 Applications au troisième ordre, $\chi^{(3)}$

Intéressons-nous maintenant aux phénomènes dus à la susceptibilité d'ordre immédiatement supérieure, le  $\chi^{(3)}$ . On y trouve des variantes des phénomènes du deuxième ordre, mais avec une onde supplémentaire : somme de 3 fréquences et génération de troisième harmonique, différences de 3 fréquences, etc. En particulier, on retrouve aussi l'analogie de l'amplification paramétrique et de l'oscillateur paramétrique présentés ci-dessus, avec une phénoménologie augmentée de quelques propriétés supplémentaires. Le  $\chi^{(3)}$  correspond à la non-linéarité du puits quantique qui nous concerne directement dans cette thèse ; les effets présentés ici sont directement visibles dans les microcavités.

**Comparaison avec le  $\chi^{(2)}$**  Notons immédiatement une différence importante avec le cas du  $\chi^{(2)}$ . Dans un milieu en  $\chi^{(2)}$  traversé par un seul faisceau incident, la polarisation non-linéaire n'a pas de composante à la fréquence du faisceau incident (à moins de considérer des cascades d'effets en  $\chi^{(2)}$ ). Par contre, dans un milieu décrit par un  $\chi^{(3)}$ , la polarisation non-linéaire a directement une composante à la fréquence du faisceau incident. Nous présenterons d'ailleurs pour commencer ces effets sur un seul faisceau, que sont l'*effet Kerr* et l'*absorption non-linéaire*.

De plus, la plupart des combinaisons de faisceaux que nous évoquerons ici peuvent être réalisées avec des ondes de fréquences très proches, voire identiques. Alors la dispersion d'indice devient négligeable ou inexistante, et le problème de l'accord de phase  $\Delta \vec{k}$  se résume au problème *géométrique* de la superposition d'ondes qui ont des directions de propagation différentes. Ceci signifie que, dans le cas où les faisceaux en jeu sont (quasi-)colinéaires, les non-linéarités en  $\chi^{(3)}$  peuvent être accumulées sur des milieux de grande taille. Par exemple, l'observation de phénomènes efficaces dans des milieux pourtant faiblement non-linéaires est possible si les faisceaux se propagent (quasi-)colinéairement sur de longues distances, comme dans des fibres optiques [8, 9].

Ce genre de processus où les faisceaux impliqués ont des fréquences voisines présentent néanmoins un inconvénient majeur : il est difficile de filtrer spectralement la pompe des autres faisceaux, dont la diffusion risque donc de polluer les mesures réalisées sur ces faisceaux. Cet problème devient critique quand il s'agit de faire des mesures sur des faisceaux de faibles intensités, voire en régime de comptage de photons. Cette remarque est importante pour notre étude des microcavités, où nous mesurerons souvent des signaux faibles. Il faudra toujours faire un effort particulier pour éviter ou tenir compte des contributions parasites aux mêmes énergies, en filtrant spatialement ou angulairement.

**Effet Kerr et absorption non-linéaire** Considérons l'effet du  $\chi^{(3)}$  sur un seul faisceau incident au milieu. Nous introduirons ainsi l'*effet Kerr* et l'*absorption non-linéaire*, tous les deux présents dans nos études sur les microcavités. La polarisation

non-linéaire s'écrit :

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 \quad (1.22)$$

$$= \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}^3 + \mathcal{E}^{*3} + 3\mathcal{E}^* \mathcal{E}^2 + 3\mathcal{E}^{*2} \mathcal{E}) \quad (1.23)$$

Gardons uniquement les termes de même phase que le faisceau incident, qui produisent des effets directement sur ce faisceau :

$$P^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (3\mathcal{E}^* \mathcal{E}^2 + 3\mathcal{E}^{*2} \mathcal{E}) \quad (1.24)$$

$$= \frac{3\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} \quad (1.25)$$

Avec cette polarisation, la fonction enveloppe  $\mathcal{A}$  obéit à l'équation de propagation suivante :

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}(z)|^2 \mathcal{A}(z) \quad (1.26)$$

L'équation sur le module carré de  $\mathcal{A}(z)$  se résout facilement :

$$\frac{d|\mathcal{A}|^2}{dz} = \mathcal{A}^* \frac{d\mathcal{A}}{dz} + \frac{d\mathcal{A}^*}{dz} \mathcal{A} \quad (1.27)$$

$$= \frac{-3\omega}{4nc} \Im(\chi^{(3)}) |\mathcal{A}(z)|^4 \quad (1.28)$$

Cette équation décrit le phénomène d'*absorption non-linéaire*, qui provient de la partie imaginaire du  $\chi^{(3)}$ . Le taux d'absorption non-linéaire est ici proportionnel au carré de l'intensité plutôt qu'à l'intensité seule. L'effet dépend du signe de  $\Im(\chi^{(3)})$  : si  $\Im(\chi^{(3)}) > 0$  alors le phénomène est appelé *absorption à 2 photons*; si au contraire  $\Im(\chi^{(3)}) < 0$ , ce qui est le cas dans le système à 2 niveaux étudié plus haut, la non-linéarité décrit alors la saturation de l'absorption. Dans les microcavités, l'absorption sature effectivement, et ceci sera essentiel dans le chapitre 4. L'équation sur l'enveloppe se résout ainsi :

$$|\mathcal{A}(z)|^2 = \frac{|\mathcal{A}(0)|^2}{1 + \frac{3\omega}{4nc} \Im(\chi^{(3)}) |\mathcal{A}(0)|^2 z} \quad (1.29)$$

Définissons maintenant la phase de l'enveloppe  $\mathcal{A}$  :  $\mathcal{A}(z) = |\mathcal{A}(z)| e^{i\Phi^{(3)}(z)}$ . En repartant de l'équation de propagation 1.26, on montre aisément que cette phase vérifie :

$$\frac{d\Phi^{(3)}}{dz} = \frac{3\omega}{8nc} \Re(\chi^{(3)}) |\mathcal{A}(z)|^2 \quad (1.30)$$

Ainsi, contrairement à la phase linéaire dont l'augmentation est constante et définie par l'indice de refraction du matériau ( $\frac{d\Phi^{(1)}}{dz} = \frac{n^{(0)}\omega}{c}$ ), la variation de la phase non-linéaire est proportionnelle à l'intensité, c'est l'*effet Kerr optique*. On peut d'ailleurs définir un indice non-linéaire du matériau :  $n^{(2)} = \frac{3\Re(\chi^{(3)})}{8n^{(0)}}$ . Dans ce cas, tout se passe comme si l'indice de refraction du milieu était maintenant  $n(I) = n^{(0)} + n^{(2)}I$ . Cet effet a plusieurs conséquences, parmi lesquelles on peut citer l'autofocalisation quand le faisceau incident est d'extension finie. Le changement d'indice décale l'énergie de résonance d'une cavité dans laquelle est placée le milieu

non-linéaire. Nous détaillerons ceci quelques lignes plus bas, puisque c'est ce qui se passe dans les microcavités.

Ainsi, la partie imaginaire de  $\chi^{(3)}$  conduit à l'*absorption non-linéaire*, tandis que la partie réelle conduit à un déphasage non-linéaire, l'*effet Kerr optique*.

**Deux faisceaux : Effet Kerr croisé et absorption croisée** Considérons maintenant la situation où deux faisceaux sont incidents sur le milieu, un faisceau pompe et un faisceau signal, et examinons comment les faisceaux agissent l'un sur l'autre. La polarisation non-linéaire s'écrit :

$$P^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{8} (\mathcal{E}_p + \mathcal{E}_p^* + \mathcal{E}_s + \mathcal{E}_s^*)^3 \quad (1.31)$$

Parmi tous les termes de cette expression, on trouve entre autres l'apparition d'un complémentaire à partir de  $\mathcal{E}_p^* \mathcal{E}_p \mathcal{E}_s^*$ . Nous le détaillerons au prochain paragraphe. Supposons pour le moment que ce faisceau ne peut pas se propager, et intéressons-nous aux effets de cette polarisation non-linéaire sur le faisceau signal lui-même. En ne gardant que les termes qui se propagent comme le signal, on obtient :

$$P^{(3)} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)}}{4} (6|\mathcal{E}_p|^2 + 3|\mathcal{E}_s|^2) \mathcal{E}_s \quad (1.32)$$

Cette polarisation non-linéaire amène au système de deux équations de propagation :

$$\frac{d\mathcal{A}_s}{dz} = \frac{i\omega \chi^{(3)}}{8nc} (6|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_s(z)|^2) \mathcal{A}_s(z) \quad (1.33a)$$

$$\frac{d\mathcal{A}_p}{dz} = \frac{i\omega \chi^{(3)}}{8nc} (6|\mathcal{A}_s(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_p(z)|^2) \mathcal{A}_p(z) \quad (1.33b)$$

Ainsi les faisceaux pompe et signal agissent l'un sur l'autre, influençant réciproquement leur intensité et leur phase. On peut montrer, de façon similaire à ce qui a été présenté dans le paragraphe précédent, que l'enveloppe  $\mathcal{A}_s(z) = |\mathcal{A}_s(z)| e^{i\Phi_s^{(3)}(z)}$  vérifie les équations suivantes :

$$\frac{d|\mathcal{A}_s|^2}{dz} = \frac{-\omega \Im(\chi^{(3)})}{4nc} (6|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_s(z)|^2) |\mathcal{A}_s(z)|^2 \quad (1.34a)$$

$$\frac{d\Phi_s^{(3)}}{dz} = \frac{\omega \Re(\chi^{(3)})}{8nc} (6|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_s(z)|^2) \quad (1.34b)$$

Ces deux équations décrivent l'effet du signal sur lui-même, exactement comme dans le paragraphe précédent, ainsi que l'effet de la pompe sur le signal, qui se décompose de façon analogue en deux parties : la partie réelle de  $\chi^{(3)}$  conduit à un déphasage du signal proportionnel à l'intensité de la pompe, on l'appelle *effet Kerr croisé*. La partie imaginaire de  $\chi^{(3)}$  conduit à un coefficient d'absorption proportionnel à l'intensité de la pompe. Selon le signe de  $\Im(\chi^{(3)})$ , il s'agit donc d'une absorption à 2 photons *croisée* où un photon pompe et un photon signal sont absorbés simultanément, ou une saturation *croisée* de l'absorption, où les photons de pompe contribuent à saturer l'absorption vue par le signal.

**Deux faisceaux : Amplification paramétrique** Considérons à présent la situation où 2 faisceaux sont incidents, pompe et signal, et un troisième faisceau, dit complémentaire, est produit par le terme  $\mathcal{E}_p \mathcal{E}_p \mathcal{E}_s^*$ . L'interaction de ces 3 ondes forme un système où peuvent être observés l'effet Kerr optique, direct et croisé, l'absorption non-linéaire, directe et croisée, mais aussi des transferts d'intensité entre les 3 faisceaux, ce qui n'était pas apparu dans les 2 paragraphes précédents, puisqu'il n'est pas possible de réaliser un tel transfert entre 2 faisceaux seulement en conservant l'énergie et l'impulsion. Ici, on aboutira donc au même genre d'effet que ce qu'on a vu dans le cas du  $\chi^{(2)}$ , c'est-à-dire à l'amplification paramétrique.

Notons tout d'abord que si la pompe se propage dans la direction  $k_p$  et le signal dans la direction  $k_s$ , alors le complémentaire issu du terme  $\mathcal{E}_p \mathcal{E}_p \mathcal{E}_s^*$  se propage dans la direction  $2k_p - k_s$ .

Les 3 fonctions enveloppes obéissent au système d'équations de propagation suivant :

$$\frac{d\mathcal{A}_s}{dz} = \frac{i\omega\chi^{(3)}}{8nc} (6|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_s(z)|^2 + 6|\mathcal{A}_c(z)|^2) \mathcal{A}_s(z) + \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p(z)^2 \mathcal{A}_c^*(z) \quad (1.35a)$$

$$\frac{d\mathcal{A}_c}{dz} = \frac{i\omega\chi^{(3)}}{8nc} (6|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 6|\mathcal{A}_s(z)|^2 + 3|\mathcal{A}_c(z)|^2) \mathcal{A}_c(z) + \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p(z)^2 \mathcal{A}_s^*(z) \quad (1.35b)$$

$$\frac{d\mathcal{A}_p}{dz} = \frac{i\omega\chi^{(3)}}{8nc} (3|\mathcal{A}_p(z)|^2 + 6|\mathcal{A}_s(z)|^2 + 6|\mathcal{A}_c(z)|^2) \mathcal{A}_p(z) + \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_s(z) \mathcal{A}_c(z) \mathcal{A}_p^*(z) \quad (1.35c)$$

Dans chacune de ces équations, le premier terme correspond aux effets Kerr et d'absorption non-linéaire. Le deuxième terme correspond au mélange des ondes, dont la forme est très proche des équations 1.17 qui sont apparues en traitant l'amplification paramétrique avec un  $\chi^{(2)}$ , à ceci près que le champ de pompe apparaît ici au carré dans les équations du signal et du complémentaire.

On peut se rapprocher d'un système d'équations soluble en faisant l'hypothèse usuelle que le faisceau de pompe est nettement plus intense que le signal et le complémentaire et qu'il est d'amplitude constante. Le système se simplifie alors :

$$\frac{d\mathcal{A}_s}{dz} = \frac{6i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}_p|^2 \mathcal{A}_s(z) + \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p^2 \mathcal{A}_c^*(z) \quad (1.36a)$$

$$\frac{d\mathcal{A}_c}{dz} = \frac{6i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}_p|^2 \mathcal{A}_c(z) + \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p^2 \mathcal{A}_s^*(z) \quad (1.36b)$$

où  $\mathcal{A}_p$  est maintenant une constante. Faisons un changement de variable pour résoudre la partie due à l'effet Kerr croisé :  $\alpha_i(z) = \mathcal{A}_i(z) e^{i\Phi^{(3)}(z)}$  avec  $\Phi^{(3)}(z) = \frac{6i\omega\chi^{(3)}}{8nc} |\mathcal{A}_p|^2 z$ . Alors les équations pour les variables  $\alpha_i$  sont :

$$\frac{d\alpha_s}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p^2 \alpha_c^*(z) \quad (1.37a)$$

$$\frac{d\alpha_c}{dz} = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p^2 \alpha_s^*(z) \quad (1.37b)$$

On trouve exactement le même système que pour le cas en  $\chi^{(2)}$ , où le coefficient de couplage entre les champs est désormais  $g = \frac{3i\omega\chi^{(3)}}{8nc} \mathcal{A}_p^2$ . Notons une fois de plus

que le champ de pompe apparaît ici au carré.<sup>4</sup> Les solutions pour  $\alpha_s$  et  $\alpha_c$  sont donc identiques à celles de la partie 1.1.3.

**En cavité : bistabilité et oscillation paramétrique** De même qu'un milieu en  $\chi^{(2)}$  placé dans un résonateur rend possible un régime d'oscillation paramétrique, ici on s'attend aussi à observer, au-delà d'une certaine intensité de seuil sur la pompe, l'apparition spontanée d'un faisceau signal et complémentaire.

Notons tout d'abord quelques différences importantes avec le cas en  $\chi^{(2)}$ . Ici s'ajoutent les effets Kerr, qui ont pour effet de rendre l'indice effectif du milieu dépendant de l'intensité<sup>5</sup>. En particulier, les phases  $\phi_{p,s,c}$  accumulées par chacun des faisceaux lors d'un tour dans le résonateur dépendent maintenant de l'intensité de chaque faisceau, ce qui revient encore à dire que les fréquences de résonance du système dépendent des intensités. En particulier, quand la partie réelle de  $\chi^{(3)}$  est négative, l'indice effectif diminue par rapport à l'indice linéaire, et les fréquences de résonance augmentent : on parle alors de *blueshift*, ou *décalage vers le bleu*. En pratique, pour rester en permanence en résonance, il faut ajuster la longueur d'onde du laser de pompe à chaque fois qu'on change sa puissance. C'est précisément ce qu'on s'efforce de faire dans les expériences résonantes en microcavité.

Avant même de parler d'oscillation paramétrique, les effets Kerr et l'absorption non-linéaire dans un résonateur conduisent au phénomène de *bistabilité* sur un seul faisceau [5]. Ceci est extrêmement important dans le contexte de cette thèse, parce qu'il nous faut nous assurer de ne pas confondre la bistabilité et l'oscillation paramétrique. Dans le chapitre 4 en particulier, nous observerons une émission dans un échantillon de microcavité à température ambiante qui, au premier coup d'oeil, ressemble à de l'oscillation paramétrique. En fait, il s'agira d'un effet issu de la bistabilité, qui n'a donc pas de propriétés paramétriques. Nous détaillons donc ici comment la bistabilité se comporte.

La bistabilité provient de la relation entre l'intensité incidente et l'intensité intracavité, qui dépend de la fréquence de résonance du résonateur et de l'absorption du milieu qu'il contient. Ces deux dernières grandeurs dépendent elles-mêmes de l'intensité intracavité. Nous présenterons le comportement bistable que l'on obtient avec des hypothèses proches des cas étudiés précédemment. Notons tout d'abord

$\kappa = \frac{3\omega\chi^{(3)}}{8nc}$ . L'équation de propagation 1.26 se réécrit sous la forme :

$$\frac{d\mathcal{A}}{dz} = i\kappa|\mathcal{A}(z)|^2\mathcal{A}(z) \quad (1.38)$$

Les relations entre les champs sur le miroir d'entrée du résonateur sont par ailleurs :

$$\mathcal{A}(0) = t\mathcal{A}^{in} - r\mathcal{A}' \quad (1.39a)$$

$$\mathcal{A}^{out} = r\mathcal{A}^{in} + t\mathcal{A}' \quad (1.39b)$$

Enfin, le champ  $\mathcal{A}'$  incident à la face intérieure du miroir tient compte du déphasage  $e^{i\Phi}$  de la cavité, et s'écrit :

$$\mathcal{A}' = e^{i\Phi}\mathcal{A}(L) \quad (1.40)$$

4. Le fait que le champ apparaisse ici au carré, mais que le reste de l'équation soit identique au cas en  $\chi^{(2)}$ , amène l'interprétation que le processus d'amplification en  $\chi^{(3)}$  présenté ici est semblable à deux processus en  $\chi^{(2)}$  en cascade.

5. Dans le cas d'un milieu en  $\chi^{(2)}$ , il y a aussi des effets Kerr, qui proviennent des cascades de deux processus du deuxième ordre, mais nous n'avons pas considéré ces cascades dans la partie précédente

Comme nous l'avons fait pour le cas de l'oscillation paramétrique en  $\chi^{(2)}$ , faisons les hypothèses suivantes : en supposant que  $\kappa$  est petit, linéarisons l'évolution de  $\mathcal{A}(z)$  :  $\mathcal{A}(z) = \mathcal{A}\left(\frac{L}{2}\right) + \left(z - \frac{L}{2}\right) \frac{d\mathcal{A}}{dz}\left(\frac{L}{2}\right) = \mathcal{A}\left(\frac{L}{2}\right) + \left(z - \frac{L}{2}\right) i\kappa \left|\mathcal{A}\left(\frac{L}{2}\right)\right|^2 \mathcal{A}\left(\frac{L}{2}\right)$ , notons  $I = \left|\mathcal{A}\left(\frac{L}{2}\right)\right|^2$  et  $I^{in} = |\mathcal{A}^{in}|^2$ , supposons que la réflectivité du miroir est grande :  $r \approx 1 - \frac{T}{2}$  où  $T$  est le coefficient de transmission en intensité du miroir, et finalement supposons que la cavité est proche de la résonance :  $\phi \approx \pi[2\pi] \Leftrightarrow e^{i\phi} \approx -(1 + i\delta)$  où  $\delta$  est appelé *désaccord* et est petit devant 1.

Partant de l'équation 1.39a, et en ne gardant que les termes aux plus bas ordres en  $T$ ,  $\delta$  et  $\kappa$ , on aboutit à :

$$I^{in} = \frac{I}{T} \left| \frac{T}{2} - i \left( \delta + \kappa \frac{L}{2} I \right) \right|^2 \quad (1.41)$$

Cette équation définit la relation entre l'intensité  $I^{in}$  incidente au résonateur et l'intensité  $I$  dans le résonateur. Cette relation est effectivement non-linéaire, le membre de droite de l'équation est un polynôme d'ordre 3 en  $I$ . Cette relation dépend de trois paramètres : la transmittivité  $T$ , le désaccord de la cavité  $\delta$  et la non-linéarité  $\kappa$ , proportionnelle au  $\chi^{(3)}$ , qui est une grandeur complexe. La figure 1.6 donne un ensemble de courbes obtenues dans le cas particulier d'un  $\chi^{(3)}$  réel négatif.

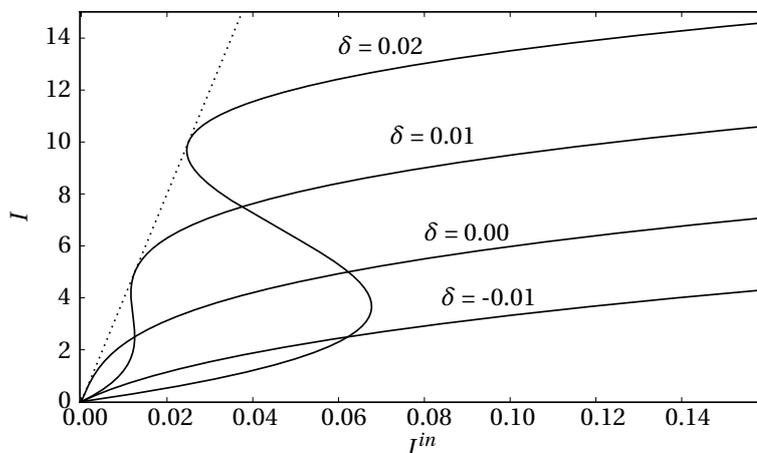


FIGURE 1.6 – Intensité intracavité  $I$  en fonction de l'intensité incidente  $I^{in}$ , pour un résonateur construit avec un miroir de transmittivité  $T = 10^{-2}$ , contenant un milieu non-linéaire tel que  $\kappa \frac{L}{2} = -10^{-3}$ , et pour différentes valeurs du désaccord  $\delta$ . La courbe en pointillés correspond à la situation où  $\delta$  compense pour chaque intensité le décalage non-linéaire.

On peut donc voir, pour certaines valeurs du désaccord de la cavité, deux régimes de fonctionnement : un régime basse-puissance où l'intensité intracavité est très faible, beaucoup plus petite que l'intensité incidente, parce que le résonateur est soit très absorbant, soit hors résonance ; et un régime haute-puissance où l'in-

tensité intracavité devient très grande devant l'intensité incidente, parce que le résonateur se trouve désormais éventuellement moins absorbant et à la résonance.

Enfin, dans le cas d'un  $\chi^{(3)}$  réel, on peut ajuster en continu le désaccord  $\delta$  pour compenser  $\kappa \frac{L}{2} I$ , et la relation entre  $I$  et  $I^{in}$  devient linéaire. C'est ce qu'on appelle expérimentalement "rester à résonance".

Discutons maintenant de l'oscillation paramétrique. On supposera donc qu'on a un faisceau pompe incident, et on cherche les conditions pour qu'un faisceau signal et complémentaire apparaissent spontanément en vertu du système {1.37a, 1.37b}. On s'attend à trouver une valeur de seuil qui dépend notamment des désaccords de cavité pour la pompe, le signal et le complémentaire.

Supposons que le désaccord sur le signal et le complémentaire est nul, par exemple parce qu'on force les modes signal et complémentaire à choisir une direction de propagation qui compense le déphasage Kerr du à la pompe. Par analogie avec le cas en  $\chi^{(2)}$ , l'équation qui définit le seuil sur l'intensité de pompe intracavité s'écrit :

$$|\kappa|^2 L^2 |\mathcal{A}_{p,seuil}|^4 = T^2 \quad (1.42)$$

Reste seulement à relier  $I_{seuil} = |\mathcal{A}_{p,seuil}|^2 = \frac{T}{|\kappa|L}$  à l'intensité incidente  $I^{in}$ , précisément grâce à la relation de bistabilité que l'on écrit plus haut. En notant  $\kappa = |\kappa|e^{i\phi_k}$ , on obtient :

$$I_{seuil}^{in} = \frac{1}{|\kappa|L} \left| \frac{T}{2} - i \left( \delta + \frac{T}{2} e^{i\phi_k} \right) \right|^2 \quad (1.43)$$

Dans le cas particulier où  $\chi^{(3)}$  est réel ( $\phi_k = \pm\pi$ ), on peut "rester à résonance" en utilisant le désaccord  $\delta$  pour compenser exactement  $\frac{T}{2} e^{i\phi_k}$ . En pratique, cela consiste à ajuster l'énergie du laser de pompe. Alors la relation pour le seuil devient tout à fait simple :

$$I_{seuil}^{in} = \frac{T^2}{4|\kappa|L} \quad (1.44)$$

Cette expression correspond à l'intuition sur le comportement du seuil : plus la non-linéarité est forte ( $|\kappa|$  grand) ou plus la résonance est fine ( $T$  petit), plus l'intensité de seuil est faible.

Cette longue introduction sur l'optique non-linéaire classique, qui a abouti à la description des phénomènes que l'on observe dans les milieux en  $\chi^{(3)}$ , est un aperçu fidèle des phénomènes résonnants que l'on observe dans une microcavité. En effet, on retrouvera l'effet Kerr, la bistabilité, la saturation de l'absorption et bien entendu l'oscillation paramétrique, qui est tout particulièrement l'objet de cette thèse. Dans les microcavités, la non-linéarité en  $\chi^{(3)}$  vient des puits quantiques, que nous décrivons maintenant. Dans la suite du chapitre, on décrira les miroirs de Bragg, puis la situation originale du couplage fort, et enfin nous reviendrons sur une propriété des oscillateurs paramétriques qui est la corrélation d'intensité entre les faisceaux créés.

## 1.2 Le puits quantique comme milieu non-linéaire

Dans les semiconducteurs, l'interaction avec la lumière aboutit à la création ou à la recombinaison de paires électron-trou qui peuvent former des états liés, les excitons. On peut favoriser ces états en nanostructurant un puits quantique, une

couche mince dans laquelle les excitons sont confinés. Les excitons sont globalement neutres, on s'attend donc à ce qu'ils se comportent linéairement à faible densité. Quand la densité d'excitons augmente, les forces coulombiennes entre les charges interviennent et le comportement devient non-linéaire. Ces non-linéarités transparaissent dans les interactions de la lumière avec l'exciton. Ainsi, en guise de rappel, on se propose dans cette partie de décrire l'exciton, et de montrer comment celui-ci interagit avec la lumière, linéairement et non-linéairement.

### 1.2.1 Exciton dans un semiconducteur massif

Pour expliciter les notations utiles dans la suite de cette thèse, nous commençons par rappeler ici la dispersion des niveaux excitoniques du semiconducteur massif. L'excitation élémentaire d'un semiconducteur est le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction. Le trou, l'état vide laissé dans la bande de valence, accompagné des  $N - 1$  états occupés par des électrons dans cette même bande, se comporte collectivement comme une quasi-particule, dont la charge, l'énergie et l'impulsion sont les opposées de celles de l'électron excité. À ce stade, l'électron et le trou forment une paire *libre*, dont l'énergie est au minimum l'énergie  $E_g$  de la bande interdite. Expérimentalement, on trouve des résonances à l'intérieur de la bande interdite, donc d'énergie inférieure à  $E_g$ . Ces résonances correspondent à des paires électron-trou *liées*, les *excitons*.

La liaison au sein de l'exciton est assurée par les forces Coulombiennes, d'une façon tout à fait semblable à la liaison de l'atome d'hydrogène. Dans l'approximation de la fonction enveloppe, on traite donc formellement l'exciton comme dans le problème du système à 2 corps, en séparant le mouvement du centre de masse et le mouvement relatif des 2 corps. Le hamiltonien de la paire électron-trou s'écrit :

$$H = E_g - \frac{\hbar^2 \nabla_e^2}{2m_e^*} - \frac{\hbar^2 \nabla_h^2}{2m_h^*} - \frac{e^2}{\epsilon|r_e - r_h|} \quad (1.45)$$

où les indices  $e$  et  $h$  désignent l'électron et le trou, les  $\nabla_i^2$  sont les laplaciens, les  $m_i^*$  sont les masses effectives et les  $r_i$  sont les coordonnées spatiales de l'électron et du trou, et  $\epsilon$  est la constante diélectrique du milieu.

Introduisons la coordonnée relative  $r = r_e - r_h$  et la coordonnée du centre de masse  $R = \frac{m_e^* r_e + m_h^* r_h}{m_e^* + m_h^*}$ , la masse totale  $M = m_e^* + m_h^*$  et la masse réduite  $\mu = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$  et enfin le vecteur d'onde global  $k = k_e + k_h$ . Le hamiltonien se décompose alors en deux termes :

$$H = H_0 + H_{rel} \quad (1.46a)$$

$$H_0 = E_g + \frac{\hbar^2 k^2}{2M} \quad (1.46b)$$

$$H_{rel} = -\frac{\hbar^2 \nabla_r^2}{2\mu} - \frac{e^2}{\epsilon r} \quad (1.46c)$$

Les variables du centre de masse et du mouvement relatif sont séparables, et les états propres de  $H$  sont des produits des états propres de  $H_0$  et  $H_{rel}$ . Les états propres du premier sont les ondes planes  $e^{ikr}$ . Les états propres du second sont quantifiés ; ce sont les fonctions  $\phi_n(r)$ , analogues des orbitales de l'atome d'hydrogène, avec

le seul nombre quantique  $n$ . L'énergie de liaison  $E_{l,n}$  de l'état  $n$  est associée à une constante de Rydberg effective  $Ry^*$ , et à un rayon de Bohr effectif  $a_{Bohr}^*$  :

$$E_{l,n} = \frac{Ry^*}{n^2} \quad n = 1, 2, \dots \quad (1.47)$$

$$Ry^* = \frac{e^2}{8\pi\epsilon a_{Bohr}^*} \quad (1.48)$$

$$a_{Bohr}^* = \frac{4\pi\epsilon\hbar^2}{\mu e^2} \quad (1.49)$$

La dispersion des états excitoniques liés est finalement donnée par :

$$E_n(k) = E_g - \frac{Ry^*}{n^2} + \frac{\hbar^2 k^2}{2M} \quad (1.50)$$

Pour  $n \rightarrow +\infty$ , l'état  $n$  tend vers le continuum de la paire électron-trou libre (figure 1.7).

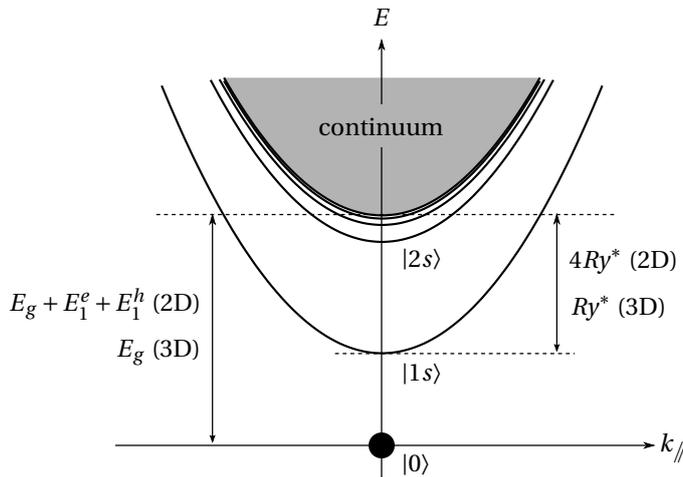


FIGURE 1.7 – Dispersion de l'énergie des états excitoniques d'un semiconducteur massif et d'un puits quantique.

Dans l'Arséniure de Gallium, GaAs, on trouve  $Ry^* \approx 4.5$  meV et  $a_{Bohr}^* \approx 110$  Å.  $Ry^*$  est nettement inférieur à  $kT_{amb}$ , donc les résonances excitoniques n'y seront visibles qu'à plus basse température.  $a_{Bohr}^*$  est grand devant le paramètre de maille  $a \approx 5.6$  Å, la distance typique entre l'électron et le trou s'étend donc sur un grand nombre de mailles cristallines.

### 1.2.2 Exciton dans un puits quantique

Nous rappellerons maintenant les courbes de dispersion des excitons d'un puits quantique. L'insertion d'une couche de gap  $E_g$  plus petit que le gap  $E_g^0$  du milieu environnant (figure 1.8) forme un puits de potentiel pour les porteurs. Dès que la largeur du puits devient comparable ou inférieure à la longueur d'onde de Broglie des électrons et des trous, on peut considérer que ceux-ci se trouvent confinés dans

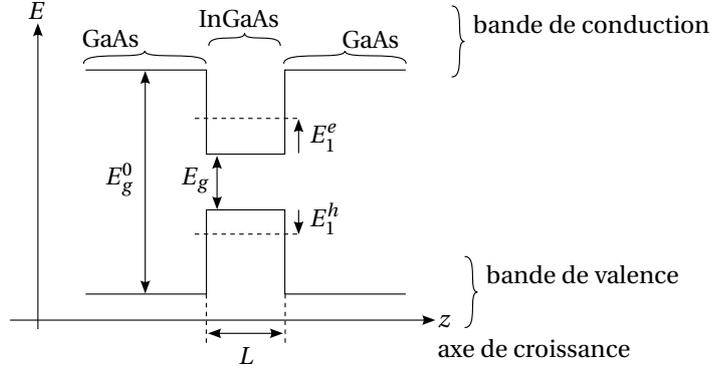


FIGURE 1.8 – Structure de bandes d'un puits quantique d'InGaAs inséré dans du GaAs.

un plan. Le vecteur d'onde  $k_{\parallel}$  dans le plan du puits reste un bon nombre quantique, mais le mouvement dans la direction perpendiculaire est désormais quantifié.

L'énergie des états quantifiés dans le puits dépend des énergies de confinement  $E_{p,q}^{e,h}$ . Les électrons et les trous libres suivent les relations de dispersion suivantes :

$$E^e(k_{p,\parallel}) = E_g + E_p^e + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_e^*} \quad p = 1, 2, \dots \quad (1.51a)$$

$$E^h(k_{q,\parallel}) = -E_q^h + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_h^*} \quad q = 1, 2, \dots \quad (1.51b)$$

On peut expliciter les énergies de confinement dans le modèle des barrières infinies. Dans ce cas, on a  $E_p^i = p^2 \frac{\hbar^2 \pi^2}{2m_i^* L^2}$ .

Toujours dans le modèle des barrières infinies, le traitement de la paire électron-trou *liée* dans le puits est très proche du traitement des excitons du semiconducteur massif, à ceci près que l'énergie de liaison prend une expression légèrement différente due au caractère bidimensionnel du système :

$$E_{l,n} = \frac{Ry^*}{(n - \frac{1}{2})^2} \quad n = 1, 2, \dots \quad (1.52)$$

Ainsi, cette énergie de liaison pour l'état  $n = 1$  est 4 fois plus grand dans le puits que dans le massif, et devient comparable à  $k_B T$ . Mieux, l'écart d'énergie entre l'exciton  $n = 1$  et le gap  $E_g^0$  du milieu environnant vaut  $(E_g^0 + E_l) - (E_g + E_1^e + E_1^h)$ . Pour un puits de 100 nm d'In<sub>0,08</sub>Ga<sub>0,92</sub>As inséré dans du GaAs, à 300K, cet écart vaut 130 meV, qui est cette fois grand devant  $k_B T$ . On s'attend donc à voir des résonances excitoniques dans un puits quantique à température ambiante, ce que nous verrons en particulier dans le chapitre 4 de cette thèse

Finalement, la courbe de dispersion de l'état excitonique fondamental dans un puits est donnée par :

$$E_1(k) = E_g + E_1^e + E_1^h - 4Ry^* + \frac{\hbar^2 k^2}{2M} \quad (1.53)$$

### 1.2.3 Couplage avec la lumière

L'interaction de l'exciton avec la lumière est modélisée par l'ajout d'un nouveau terme dans le hamiltonien. Celui-ci est explicite dans le cadre de l'approximation des champs faibles, pour un champ *classique*.

$$H_{dip} = \frac{q}{m} \vec{p} \cdot \vec{A} \quad (1.54)$$

où  $\vec{p}$  est l'opérateur impulsion de la charge  $q$  et  $\vec{A}$  le potentiel vecteur du champ électromagnétique, traité classiquement.

Les probabilités de création et de recombinaison d'un exciton, qui sont aussi respectivement les probabilités d'absorption et d'émission d'un photon, sont proportionnelles à l'élément de matrice  $\langle 0_X | \vec{p} \cdot \vec{A} | 1_X \rangle$ , où  $|0_X\rangle$  désigne l'état fondamental du cristal, sans exciton, et  $|1_X\rangle$  désigne le premier état excité du cristal, avec un exciton. Ceci permet d'établir plusieurs règles de conservation. Pour des raisons de symétrie spatiale, on en déduit d'abord que seuls les excitons de type  $s$  sont couplés aux champs électromagnétiques. Ensuite, la conservation du moment angulaire implique une deuxième règle de sélection. Les électrons ont un moment  $1/2$ , les trous lourds ont un moment  $3/2$ , donc les excitons ont un moment angulaire total  $J_{exc}$  égal à 1 ou 2. Seuls les excitons de moment angulaire total  $J_{exc} = 1$  sont couplés à la lumière (plus particulièrement aux photons de polarisation circulaire). Les autres excitons (de moment  $J_{exc} = 2$ ) ne sont pas couplés, on les appelle *excitons noirs*.

### 1.2.4 Plusieurs excitons

Expérimentalement, la lumière absorbée crée plusieurs excitons. Jusqu'ici, nous avons implicitement supposé que ces excitons étaient indépendants, ce qui est réaliste aux faibles densités. La prise en compte des interactions coulombiennes entre toutes les charges présentes rend le problème non-linéaire. En particulier la réponse optique d'un ensemble d'excitons est non-linéaire, ce qui fera le lien avec la partie 1.1 où nous avons présenté une sélection de phénomènes non-linéaires que les excitons pourront réaliser. Présentons quelques grandes lignes de la façon dont on peut modéliser un tel ensemble d'excitons.

Décrire le comportement du puits quantique pour une densité arbitraire de paires électrons-trous est un défi qui a fait l'objet de nombreuses études et reste un thème de recherche dynamique [10–18]. Nous proposons de rappeler ici une approche possible, qui consiste à tronquer l'hamiltonien du système d'électrons-trous couplés à la lumière au deuxième ordre, ce qui nous permettra dans les chapitres 3 et 5 de modéliser les phénomènes paramétriques ayant lieu dans une microcavité<sup>6</sup>.

Nous traitons le système d'électrons et de trous dans le cadre de la seconde quantification, outil pratique et couramment utilisé dans la littérature pour modéliser les phénomènes paramétriques en microcavité (par exemple [19]). Le hamiltonien du système couplé à un champ quantique de vecteur d'onde  $q$  dans le plan de puits et d'énergie  $\omega_q$ , proche de l'énergie de l'exciton "nu", s'écrit comme une somme de trois termes :

6. Dans la partie du chapitre 4 traitant de la température ambiante, on décrira plutôt l'exciton comme un système à deux niveaux, pour lequel le mécanisme de la saturation est suffisamment simple pour donner des résultats analytiques sans se limiter au deuxième ordre.

$$H = H_0 + H_{dip} + H_{Coulomb} \quad (1.55a)$$

$$H_0 = \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q + \sum_k E_k^e c_k^\dagger c_k + \sum_{k'} E_{k'}^h h_{k'}^\dagger h_{k'} \quad (1.55b)$$

$$H_{dip} = \sum_k G c_{q-k}^\dagger h_k^\dagger a_q + h.c. \quad (1.55c)$$

$$H_{Coulomb} = \frac{1}{2} \sum_{k,k',p \neq 0} V(p) \left( c_k^\dagger c_{k'}^\dagger c_{k+p} c_{k'-p} + h_k^\dagger h_{k'}^\dagger h_{k+p} h_{k'-p} - 2c_k^\dagger h_{k'}^\dagger c_{k+p} h_{k'-p} \right) \quad (1.55d)$$

Ici par souci de clarté on n'a pas mentionné les sommes sur les spins. Le premier terme  $H_0$  est le terme linéaire d'énergie cinétique pour les photons (opérateurs de création  $a_q^\dagger$  et d'annihilation  $a_q$ ), les électrons ( $c_k^\dagger$  et  $c_k$ ) et les trous ( $h_k^\dagger$  et  $h_k$ ). Le deuxième terme  $H_{dip}$  correspond à l'interaction dipolaire entre le champ et les paires de charges, qui s'interprète par la création d'un électron et d'un trou lorsqu'un photon est annihilé, et vice-versa. Enfin, le dernier terme dans le hamiltonien,  $H_{Coulomb}$ , correspond aux interactions Coulombiennes. Il se décompose lui-même en l'interaction entre électrons d'abord, entre trous ensuite, et entre électrons et trous enfin.  $V(p)$  est la transformée de Fourier du potentiel Coulombien. Dans le cas du puits bidimensionnel, il s'écrit  $V(p) = \frac{2\pi e^2}{Ac p}$ , où  $A$  est la surface de l'échantillon.

Toujours dans une limite de faible densité, développons ce hamiltonien 1.55 au second ordre en densité d'excitons [19]. La transformation qui réécrit cet hamiltonien agissant sur les électrons et les trous (des fermions) en un hamiltonien agissant sur les excitons (des bosons) s'appelle la transformation d'Usui<sup>7</sup> [15, 20]. En tronquant au deuxième ordre en densité l'expression de ce hamiltonien transformé, on trouve l'expression suivante, communément utilisée pour interpréter les phénomènes non-linéaires pour une faible densité d'excitons [19], ainsi que pour étudier

7. On peut construire un opérateur de création d'un exciton d'impulsion  $k$ , dans l'état  $n$ , comme suit :

$$b_{n,K}^\dagger = \sqrt{A} \sum_{k,k'} \delta(K - (k - k')) \psi_n\left(\frac{k+k'}{2}\right) c_k^\dagger h_{-k'}^\dagger \quad (1.56)$$

où  $\psi_n\left(\frac{k+k'}{2}\right)$  est la transformée de Fourier d'espace de la fonction d'onde de l'exciton dans l'état  $n$ .

En particulier, on peut montrer que les excitons à faible densité se comportent comme des bosons. Cela se voit dans la relation de commutation des opérateurs, qui vaut dans le cas particulier de l'état fondamental :

$$\langle [b_{1,0}, b_{1,0}^\dagger] \rangle = 1 - O(Na_0^2) \quad (1.57)$$

où  $N$  est la densité surfacique d'excitons. Les excitons se comportent comme un gaz de bosons tant qu'ils sont espacés de plus que le rayon de Bohr  $a_0$ . La déviation au comportement bosonique est proportionnelle à la densité  $N$ .

les propriétés des fluctuations quantiques dans ces conditions [21] :

$$H = H_0 + H_{dip} + H_{X-X} + H_{sat} \quad (1.58a)$$

$$H_0 = \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q + \sum_k \omega_k b_k^\dagger b_k \quad (1.58b)$$

$$H_{dip} = \frac{\Omega_R}{2} b_q^\dagger a_q + h.c. \quad (1.58c)$$

$$H_{X-X} = \frac{1}{2} \sum_{k,k',q} V_0 b_k^\dagger b_{k'}^\dagger b_{k+q} b_{k'-q} \quad (1.58d)$$

$$H_{sat} = - \sum_{k,k',q} V_{sat} (a_k^\dagger b_{k'}^\dagger b_{k+q} b_{k'-q} + a_k b_{k'} b_{k+q}^\dagger b_{k'-q}^\dagger) \quad (1.58e)$$

où  $V_0 \approx \frac{6e^2 a_0}{\epsilon_0 A}$  dans la limite des vecteurs d'ondes  $q$  petits, et  $V_{sat} = \frac{\Omega_R}{2n_{sat}A}$  avec  $n_{sat} = \frac{7}{16\pi a_0^2}$ .

L'interaction coulombienne fait se décaler l'énergie de la résonance excitonique par un phénomène d'écrantage [22, 23], ce que traduit  $H_{X-X}$  à l'ordre le plus bas. Par ailleurs, quand la densité de paires  $N$  approche la densité de saturation de l'ordre de  $1/a_0^2$ , l'espace des phases se remplit et le couplage entre excitons et photons sature [22, 24]. Au premier ordre également, c'est ce que décrit  $H_{sat}$ . On retrouve ici les deux mécanismes essentiels qui contribuent à la non-linéarité optique d'un puits quantique : décalage des raies par l'interaction coulombienne, et saturation de la densité d'excitons. Le comportement des excitations du puits quantique ressemble donc d'une part à l'oscillateur anharmonique, et d'autre part au système à 2 niveaux, pour la saturation. Le comportement décrit dans par le hamiltonien *quadratique* 1.58 correspond à une interaction en  $\chi^{(3)}$ .

Si la densité augmente en dehors du régime  $N \ll n_{sat}$ , la résonance excitonique sature et disparaît de façon analogue au cas du système à deux niveaux. Il faut alors entreprendre une description plus générale en termes d'électrons et de trous, par exemple avec les équations de Bloch dans les semiconducteurs [16].

Ceci conclut la présentation des excitations fondamentales d'un puits quantique de semiconducteur. Poursuivons la description des éléments d'une microcavité par l'étude des miroirs de Bragg.

### 1.3 Les miroirs de Bragg

Un milieu stratifié formé par l'empilement de paires de couches d'indices optiques différents et d'épaisseurs bien contrôlées permet de réaliser un miroir de très grande réflectivité sur une certaine gamme de longueurs d'onde, appelé miroir de Bragg, ou "Distributed Bragg Reflector" (DBR). À chaque interface entre deux couches successives le champ est réfléchi et transmis ; il en résulte des interférences qu'on rend constructives en réflexion pour réaliser un miroir (On peut aussi les rendre constructives en transmission pour réaliser une dépôt anti-reflet). Dans le cadre de cette thèse, on considèrera des empilement de paires AlAs/GaAs (ou des alliages du type  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ). Nous présentons ici quelques expressions caractéristiques des propriétés des miroirs de Bragg [25].

Supposons qu'on empile  $N$  paires de couches de deux milieux d'indices (réels)  $n_1$  et  $n_2$ , d'épaisseurs optiques  $\frac{\lambda_0}{2}$ , sur un substrat d'indice  $n_{int}$ , le milieu extérieur

ayant pour indice  $n_{ext}$  (figure 1.9). Alors, la réflectivité en incidence normale au voisinage de  $\lambda_0$  s'écrit :

$$R = 1 - 4 \frac{n_{ext}}{n_{int}} \left( \frac{n_1}{n_2} \right)^{2N} \quad (1.59)$$

La réflectivité grandit donc avec le contraste d'indice et le nombre de paires. En pratique,  $R$  peut atteindre des valeurs très proches de 1, plus grandes que pour des miroirs métalliques. Par exemple, pour un miroir de 22 couches avec  $n_1 = n_{int} = n_{GaAs} = 3.54$ ,  $n_2 = n_{AlAs} = 2.96$  et  $n_{ext} = 1$  (valeurs à 4 K pour  $\lambda \sim 850$  nm), on trouve  $R \approx 0.99957$ . Si on prend en compte l'absorption ( $n_1, n_2 \in \mathbb{C}$ ), la valeur de  $R$  est plus faible, mais encore très proche de 1.

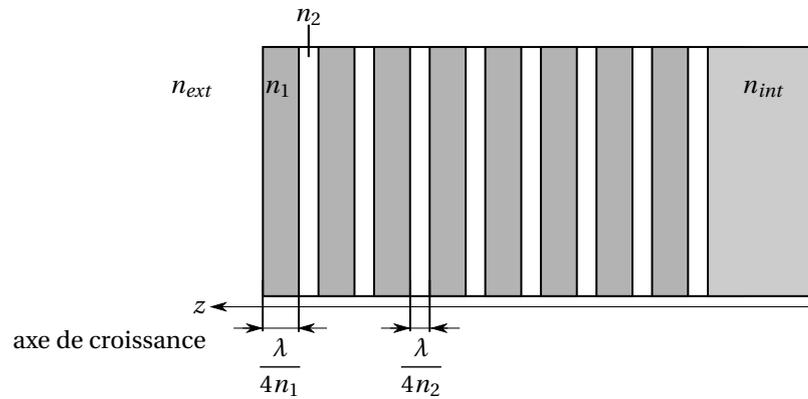


FIGURE 1.9 – Structure d'un miroir de Bragg.

Pour traiter le cas général d'un milieu stratifié composé de couches de composition et d'épaisseurs arbitraires, soumis à un champ de longueur d'onde  $\lambda$  et d'angle d'incidence également arbitraires, on a recouru à la méthode des matrices de transfert, qui permet de résoudre les équations de Maxwell (linéaires) dans le système. Le champ est alors décrit par le vecteur  $(U, V)$  dont les composantes correspondent respectivement, dans le cas d'une excitation transverse électrique (TE), à l'amplitude du champ électrique et à une des deux composante de l'amplitude du champ magnétique. La propagation dans chaque couche agit linéairement sur ce vecteur, elle est décrite par la multiplication par une matrice  $2 \times 2$ .

La figure 1.10 illustre le spectre de réflectivité d'un miroir de Bragg de 13 paires de couches de  $Al_{0.05}Ga_{0.95}As/AlAs$  à 4 K. On note la largeur spectrale finie  $\Delta E$  où la réflectivité est très grande, appelée *bande d'arrêt*<sup>8</sup>. Cette largeur augmente aussi avec le contraste d'indice, mais pas avec le nombre de paires :  $\Delta E = \frac{4E_0}{\pi} \frac{n_2 - n_1}{n_1 + n_2}$ , où  $E_0$  est l'énergie centrale. En dehors de la bande d'arrêt, la réflectivité oscille en passant près de zéro, ce sont les *oscillations de Bragg*. Le spectre présenté tient compte aussi de l'absorption des couches, or la bande interdite de  $Al_{0.05}Ga_{0.95}As$  se situe juste en-dessous de 1.6 eV, ce qui explique l'apparition de l'absorption et de l'amortissement des oscillations de Bragg au-dessus de cette énergie.

Contrairement à un miroir métallique où le champ est déphasé de  $\pi$  après réflexion, le champ pénètre dans le miroir de Bragg sur une longueur caractéristique

8. Similairement, le miroir est très réfléchissant sur une largeur angulaire  $\Delta\theta$ , au-delà de laquelle la réflectivité oscille et passe périodiquement près de zéro.

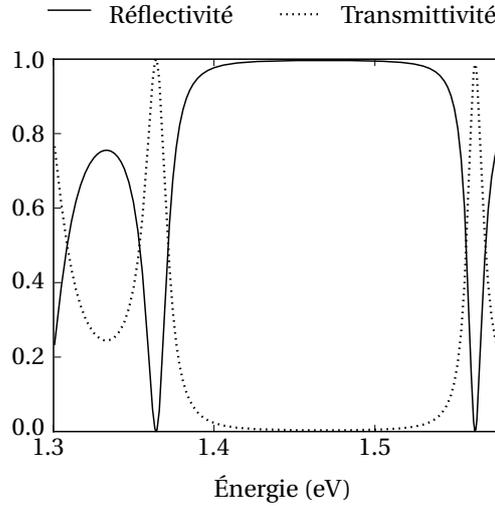


FIGURE 1.10 – Spectres de réponse d'un miroir de Bragg en incidence normale (13 paires de couches de  $\text{Al}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}/\text{AlAs}$  à 4 K, sur un substrat transparent). La courbe pleine représente la réflectivité et la courbe en pointillés représente la transmittivité.

$L_{DBR}$  ce qui introduit un déphasage  $\phi$  qui vaut :

$$\phi = \frac{n_{int} L_{DBR}}{\hbar c} (E - E_0) \quad (1.60)$$

$$L_{DBR} = \frac{\lambda_0}{2} \frac{n_1 n_2}{n_{int}(n_2 - n_1)} \quad (1.61)$$

Au centre de la bande d'arrêt, le déphasage  $\phi$  est nul. Avec les valeurs de  $n_1$  et  $n_2$  données ci-dessus, on trouve  $L_{DBR} \approx 2.5\lambda_0$ , ce qui signifie que le champ pénètre typiquement à travers 5 paires de couches.

### 1.3.1 Microcavité formée de deux miroirs

En mettant deux miroirs de Bragg face à face, avec une couche intermédiaire de longueur  $L_{int}$  appropriée, on forme une cavité optique planaire de type Fabry-Pérot (figure 1.11). La longueur optique de cette cavité tient compte de la profondeur  $L_{DBR}$  de pénétration du champ dans chaque miroir, et vaut  $L_C = L_{int} + L_{DBR,front} + L_{DBR,back}$ . La couche de cavité est typiquement très petite,  $L_{int} = \lambda_0$  dans nos échantillons, ce qui fait que la cavité complète fait quelques  $\lambda_0$  d'épaisseur, d'où le nom de *microcavité*.

Dans une cavité Fabry-Pérot, les réflexions internes créent des interférences qui, en incidence normale, sont constructives à chaque fois que la longueur de cavité est un multiple de la demi-longueur d'onde. Plus généralement, les interférences sont constructives dès que le déphasage  $\phi$  entre deux ondes planes issues de réflexions successives est un multiple de  $2\pi$ . Ces résonances donnent des pics sur l'intensité transmise par la cavité et sur l'intensité intra-cavité, et des creux sur l'intensité réfléchie.

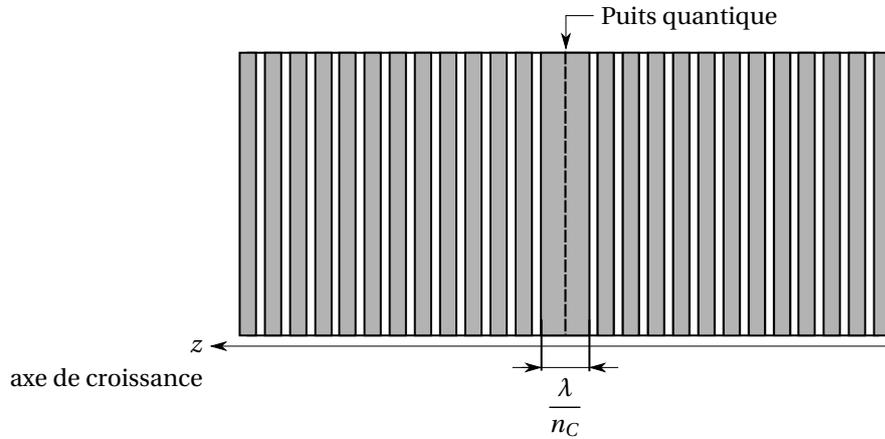


FIGURE 1.11 – Microcavité formée de 2 miroirs de Bragg. Les puits quantiques seront insérées aux ventres du champ électromagnétique, par exemple au centre de la cavité de longueur optique  $\lambda$ .

Comme pour les miroirs de Bragg, la méthode des matrices de transfert permet de simuler les spectres de réflectivité et de transmittivité d'une structure de microcavité réaliste. La figure 1.12 reproduit le résultat de ce calcul pour une cavité formée de 2 miroirs identiques à ceux utilisés pour la figure 1.10. On note le creux qui est apparu dans le spectre de réflectivité, correspondant à la résonance de cavité.

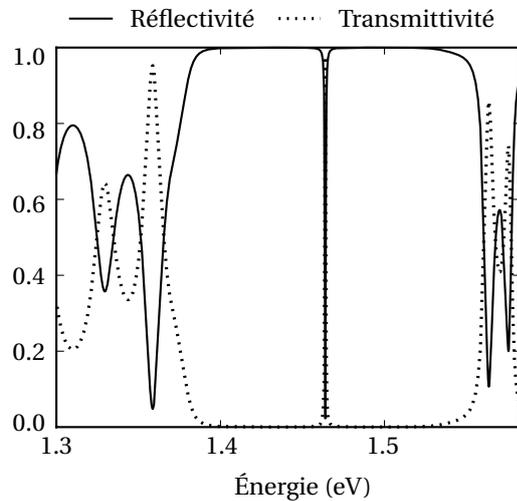


FIGURE 1.12 – Spectres d'une cavité formée par deux miroirs de Bragg (2 miroirs de 13 paires de couches de  $\text{Al}_{0.05}\text{Ga}_{0.95}\text{As}/\text{AlAs}$  à 4 K, sur un substrat transparent). La courbe pleine représente la réflectivité et la courbe en pointillés représente la transmittivité.

Dans le cadre de cette thèse, la dépendance angulaire des résonances de cavité est essentielle. Supposons qu'une onde plane de longueur d'onde  $\lambda$  éclaire avec un

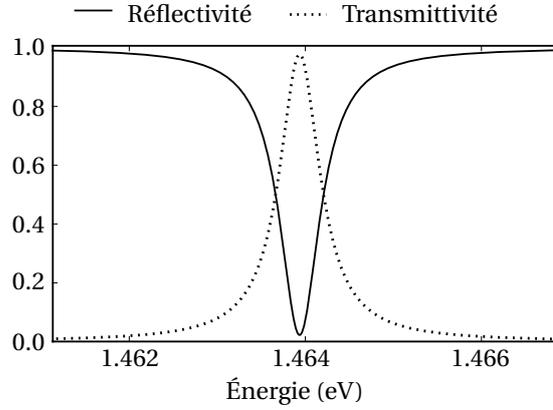


FIGURE 1.13 – Zoom sur le spectre de la figure 1.12. La courbe pleine représente la réflectivité et la courbe en pointillés représente la transmittivité.

angle  $\theta$  la cavité de longueur optique  $L_C$ . Dans la cavité, les ondes ont un angle  $\theta'$  défini par les lois de Snell-Descartes. Alors  $\phi = \frac{4\pi L_C \cos(\theta')}{\lambda}$ . La condition de résonance équivaut donc à :

$$p\lambda = 2L_C \cos(\theta') \quad p \in \mathbb{N}^* \quad (1.62)$$

On décrit usuellement le photon traversant la cavité par son vecteur d'onde  $k$  et ses composantes dans le plan de la cavité  $k_{//}$  et perpendiculaire à la cavité  $k_z$ . La relation précédente est équivalente à dire que le vecteur  $k_z$  est quantifié par la cavité et s'écrit  $k_z = \frac{p\pi}{L_C}$ , tandis que l'énergie du mode de cavité  $p$  vaut :

$$E = \frac{hc}{\lambda} = \frac{\hbar c}{n_C} \sqrt{\left(\frac{p\pi}{L_C}\right)^2 + k_{//}^2} \quad (1.63)$$

Ceci définit la dispersion d'une cavité planaire, qui est une relation hyperbolique entre  $E$  et  $k_{//}$ .

**Finesse** La qualité d'un résonateur se mesure qualitativement au nombre moyen d'aller-retours moyen qu'un photon fait à l'intérieur avant de s'échapper. C'est la grandeur appelée *finesse* qui traduit cette notion. On définit la finesse  $F$  par le rapport de l'intervalle spectral libre  $\Delta\lambda$  (l'écart en longueur d'onde entre deux résonances successives de la cavité) sur la largeur à mi-hauteur  $\delta\lambda$  du creux de réflectivité :  $F = \frac{\Delta\lambda}{\delta\lambda}$ . Pour une cavité formée par deux miroirs de réflectivité en amplitude  $r_1$  et  $r_2$  (réels), la finesse prend une forme simple :  $F = \pi \frac{\sqrt{r_1 r_2}}{1 - r_1 r_2}$ . La finesse est habituellement voisine de  $10^3$  dans les structures que nous étudions ici.

**Cavités réelles et limitations** D'après les formules établies ci-dessus, il suffit apparemment d'augmenter le nombre de paires de couches des miroirs de Bragg pour atteindre une finesse de cavité arbitrairement grande. En pratique, les microcavités planaires sont néanmoins limitées par plusieurs facteurs.

D'abord, on ne peut pas fabriquer un échantillon avec un nombre arbitraire de couches, mais le léger désaccord de maille entre GaAs et AlAs, qui composent les couches successives, impose une épaisseur totale critique au-delà de laquelle

l'échantillon présente de nombreuses dislocations. Ainsi, pour concevoir la microcavité triple présentée dans le chapitre 5, la plus épaisse des structures étudiées dans cette thèse, on s'est limité à une épaisseur finale de  $9.94 \mu\text{m}$ , ce qui est déjà considérable en comparaison des microcavités planaires usuelles. Nous n'avons pas observé de dislocations dans cet échantillon.

Ensuite, les transitions excitoniques se situent à quelques dizaines de meV du bord des bandes interdites, et on souffre donc de la queue d'absorption des semi-conducteurs utilisés. Même si cette queue d'absorption est exponentiellement petite, elle n'est pas négligeable compte tenu de la grande finesse recherchée ( $F > 10^3$ ).

On notera aussi que les interfaces entre les couches sont en pratique imparfaites, et leur rugosité conduit à de la diffusion résonante, aussi appelé *diffusion Rayleigh* [26–28]. Cette diffusion a des caractéristiques angulaires particulières, que nous décrirons plus en détail sur la base de nos résultats expérimentaux notamment dans le chapitre 4.

Enfin, les champs électromagnétiques utilisés expérimentalement ne sont pas des ondes planes mais des faisceaux gaussiens focalisés. Ceci introduit des effets de taille finie, connus sous le nom d'effet de *walk-off*, qui tendent à réduire la finesse de la cavité dès qu'on l'éclaire avec un angle non-nul. Le *walk-off* sera un paramètre déterminant pour l'existence du régime d'oscillation paramétrique dans les microcavités étudiées dans le chapitre 4.

## 1.4 Microcavités et polaritons

Nous avons décrit ci-dessus les deux éléments-clés qui nous permettent de réaliser un oscillateur paramétrique microscopique : un milieu non-linéaire qui est le puits quantique, et un résonateur formé par deux miroirs de Bragg. La combinaison des deux, aussi appelée *microcavité*, est l'objet de base de cette thèse. Dans cette partie nous décrirons comment les excitons sont couplés à la lumière.

### 1.4.1 Cavité et puits

On peut décrire le système couplé des photons de microcavité et des excitons selon plusieurs approches. Les structures réelles peuvent être simulées par la méthode des matrices de transfert, déjà évoquée plus haut. Il faut alors attribuer une susceptibilité à la couche du puits quantique, et usuellement on choisit celle de l'oscillateur de Lorentz, équivalente à la susceptibilité d'un système à deux niveaux dans le régime linéaire.<sup>9</sup>

Alternativement, on peut décrire la microcavité par un hamiltonien où toutes les excitations sont traitées en seconde quantification, y compris les photons de cavité. Les états propres de cet hamiltonien et leurs propriétés permettent d'expliquer une large gamme de phénomènes apparaissant dans le régime linéaire. L'hamiltonien  $H$  du système couplé à un champ quantique de vecteur d'onde  $q$  dans le plan de puits

9. La méthode des matrices de transfert peut être adaptée au régime non-linéaire quand la structure contient des couches avec des susceptibilités en  $\chi^{(3)}$ , dans la limite où elle est éclairée par un mélange de deux ondes, une pompe et une sonde, et que la pompe est très intense en comparaison de la sonde. Dans ce cas, les équations pour la pompe se découplent des équations pour le signal et le complémentaire. Ces dernières restent couplées mais sont linéaires, et donc décrites par des matrices  $4 \times 4$ . On peut alors résoudre en premier lieu la propagation de la pompe dans la structure, ce qui définit l'ensemble de matrices  $4 \times 4$ , puis la propagation de la sonde et du complémentaire.

et d'énergie  $\omega_q$ , proche de l'énergie de l'exciton "nu", s'écrit :

$$H = \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q + \sum_k \hbar\omega_k b_k^\dagger b_k + \frac{\hbar\Omega_R}{2} (b_q^\dagger a_q + h.c.) \quad (1.64)$$

Ici encore par souci de clarté on n'a pas mentionné les sommes sur les spins. Le premier terme dans  $H$  est le terme linéaire d'énergie cinétique pour les photons (opérateurs de création  $a_q^\dagger$  et d'annihilation  $a_q$ ), suivi de l'énergie cinétique des excitons ( $b_k^\dagger$  et  $b_k$ ) et enfin du couplage entre excitons et photons, décrit par la fréquence  $\Omega_R$ , dite *fréquence de Rabi*.  $\Omega_R$  est défini à partir de la force d'oscillateur de l'exciton, qui se déduit elle-même du module-carré de l'élément de matrice de l'interaction dipolaire correspondant à la création d'un exciton.

On a ainsi un système d'équation de deux oscillateurs couplés. Les modes propres de  $H$  sont appelés *polaritons de cavité*, qu'on note  $p_k^{(\pm)}$ . Les énergies propres correspondantes sont notées  $E_\pm(k)$ . Elles diffèrent alors des énergies découplées  $E_C(k)$  et  $E_X(k)$ , et s'expriment en fonction du *désaccord*  $\delta_k = E_C(k) - E_X(k)$  (dans la suite,  $k$  désigne implicitement  $k_{//}$ ) :

$$E_\pm(k) = \frac{1}{2} \left( E_C(k) + E_X(k) \pm \sqrt{\delta_k^2 + (\hbar\Omega_R)^2} \right) \quad (1.65)$$

Les modes  $p_k^{(\pm)}$  sont des combinaisons linéaires de l'exciton et du photon :

$$p_k^{(+)} = C_k a_k + X_k b_k \quad (1.66)$$

$$p_k^{(-)} = X_k a_k - C_k b_k \quad (1.67)$$

Les coefficients  $X$  et  $C$  dans cette combinaison linéaire sont appelés *coefficients de Hopfield* [29]. Ils vérifient  $|X|^2 + |C|^2 = 1$  et s'expriment par exemple en fonction de l'écart  $E_\pm(k) - E_X(k)$ , facile à évaluer expérimentalement :

$$X_k = \frac{1}{\sqrt{1 + 4 \left( \frac{E_{(+)}(k) - E_X(k)}{\hbar\Omega_R} \right)^2}} \quad (1.68)$$

$$C_k = -\frac{1}{\sqrt{1 + \frac{1}{4} \left( \frac{\hbar\Omega_R}{E_{(+)}(k) - E_X(k)} \right)^2}} \quad (1.69)$$

Sur la figure 1.14, on a tracé les énergies  $E_\pm$  et les coefficients  $|X|^2$  et  $|C|^2$  en fonction du désaccord  $\delta_k$ , dans le cas où  $E_X$  est fixée. La courbe pour  $E_\pm$  présente un *anticroisement* notable au voisinage de  $\delta_k \approx 0$ , c'est ce qu'on appelle le régime de *couplage fort*. La levée de dégénérescence à  $\delta_k = 0$  est appelée *dédoublément de Rabi*.

On peut aussi évaluer les *dispersions*  $E_\pm(k)$ , dispersions qu'on visualisera régulièrement dans les expériences. On a représenté quelques dispersions ainsi que les coefficients de Hopfield en fonction de  $k$  sur la figure 1.15. On note qu'à grand vecteur d'onde, le polariton bas tend vers l'exciton, tandis que le polariton haut tend vers le photon. Inversement, à proximité de l'incidence normale, il y a un couplage important entre les deux modes. Le polariton *oscille* entre ses deux composantes.

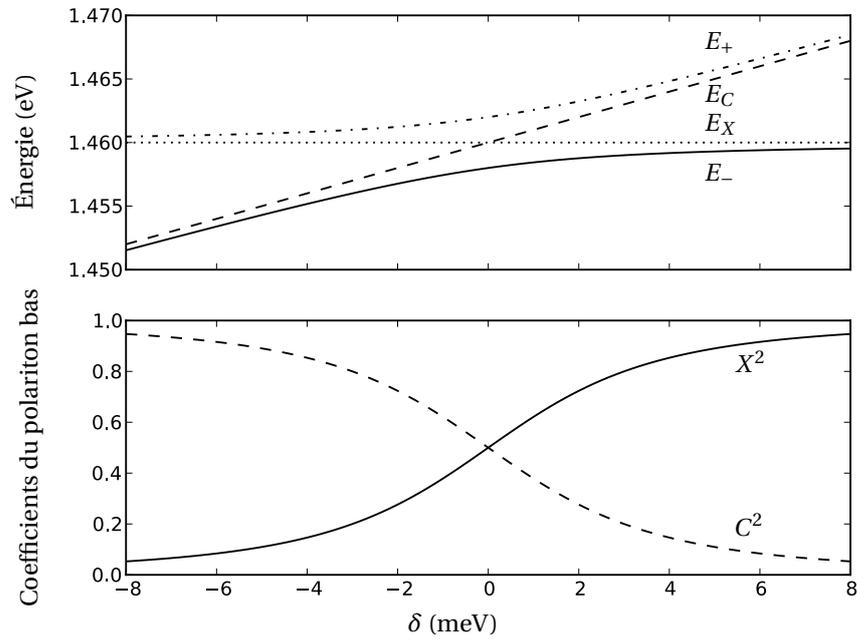
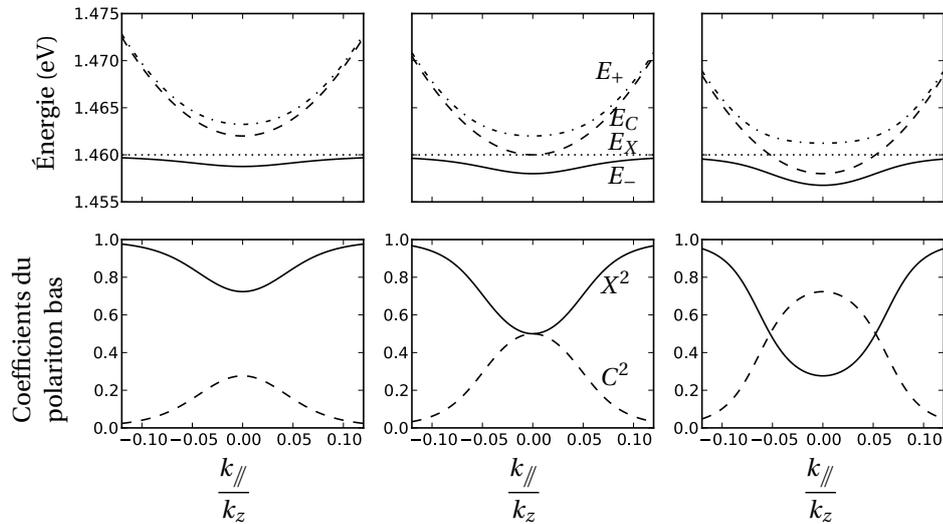


FIGURE 1.14 – Anticrossing des énergies propres de la microcavité.

FIGURE 1.15 – Dispersion angulaire des énergies et des coefficients de Hopfield, pour trois désaccords  $\delta_0$  :  $\delta_0 > 0$  à gauche,  $\delta_0 = 0$  au centre et  $\delta_0 < 0$  à droite.

### 1.4.2 Couplage fort et couplage faible, temps de vie

Jusqu'à nous avons négligé les processus de relaxation qui donnent des temps de vie finis aux photons de cavité et aux excitons. Si ces processus ne sont pas négligeables, le dédoublement observé dans le paragraphe précédent peut se réduire jusqu'à se confondre dans les largeurs de raies des photons de cavité et des exci-

tons. On atteint alors le régime de *couplage faible*. Quantitativement, on peut traiter simplement les relaxations par un hamiltonien effectif contenant des énergies complexes [30] :  $E_C(k) - i\gamma_C(k)$  et  $E_X(k) - i\gamma_X(k)$ . Les énergies propres  $E_{\pm}$  deviennent alors complexes également, leur partie réelle donne l'énergie tandis que la partie imaginaire donne le taux de relaxation des polaritons :

$$E_{\pm} = \frac{1}{2} \left( E_C + E_X - i(\gamma_C + \gamma_X) \pm \sqrt{(\delta - i(\gamma_C - \gamma_X))^2 + (\hbar\Omega_R)^2} \right) \quad (1.70)$$

En particulier, à désaccord nul l'écart en énergie entre les polaritons vaut :

$$\sqrt{(\hbar\Omega_R)^2 - (\gamma_C - \gamma_X)^2} \quad (1.71)$$

Si la différence des taux de relaxation devient plus grande que  $\hbar\Omega_R$ , il n'y a mathématiquement plus de dédoublement. Dans le cas contraire, il faut de toute façon comparer ce dédoublement à la largeur des raies qui vaut à désaccord nul  $\frac{\gamma_C + \gamma_X}{2}$ . Globalement, on a donc *couplage fort* quand les largeurs spectrales photoniques et excitoniques sont petites devant le dédoublement de Rabi.

La figure 1.16 illustre l'évolution des énergies en fonction du taux de relaxation des photons de cavité, celui des excitons étant fixé.  $E_+$  et  $E_-$  se rejoignent quand  $|\gamma_C - \gamma_X| > \hbar\Omega_R$  : il s'agit de la disparition du couplage fort.

### 1.4.3 Origines du passage au couplage faible

On atteint le régime de couplage faible pour deux raisons : soit les largeurs de raies sont trop grandes, soit le couplage de Rabi est trop faible.

On peut se trouver dans le premier cas si les miroirs ne sont pas assez réfléchissants, en particulier si les paires de couches qui les forment ne sont pas en nombre suffisant. Ceci doit être réglé au moment de la conception de la structure.

Citons également les sources de relaxation "structurales" : les impuretés, la rugosité aux interfaces et autres inhomogénéités du puits quantique et des couches formant les miroirs. C'est en optimisant les paramètres de la croissance épitaxiales des échantillons que ces sources peuvent être réduites.

Ensuite, l'interaction avec les phonons conduit à un élargissement proportionnel à la température. À haute température, l'exciton dans des puits d'InGaAs a une largeur d'environ 8 meV, tandis que le couplage  $\Omega_R$  ne fait que quelques meV pour un puits. À moins de dessiner la structure pour avoir un très grand nombre de puits, ce qui augmente le couplage global, on s'attend à être en régime de couplage faible.

Enfin, les non-linéarités du puits quantique se traduisent notamment par la saturation du couplage  $\Omega_R$ , accompagnée d'un élargissement de la raie excitonique. Ainsi, si le système est en couplage fort à faible intensité lumineuse, il peut transiter vers le couplage faible quand l'intensité lumineuse augmente. Ce phénomène est d'ailleurs la base d'une catégorie de dispositifs bistables dans les microcavités, parce qu'il se traduit par un important décalage des énergies propres (de l'ordre de  $\Omega_R$ ) [31–34].

Pour modéliser le régime de couplage faible, on peut distinguer deux situations : si le système est en couplage faible parce que les largeurs de raies sont trop grandes devant le couplage de Rabi, on peut traiter le couplage de manière perturbative (D. TAJ, T. LECOMTE, C. DIEDERICHS, PH. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE ET J. TIGNON

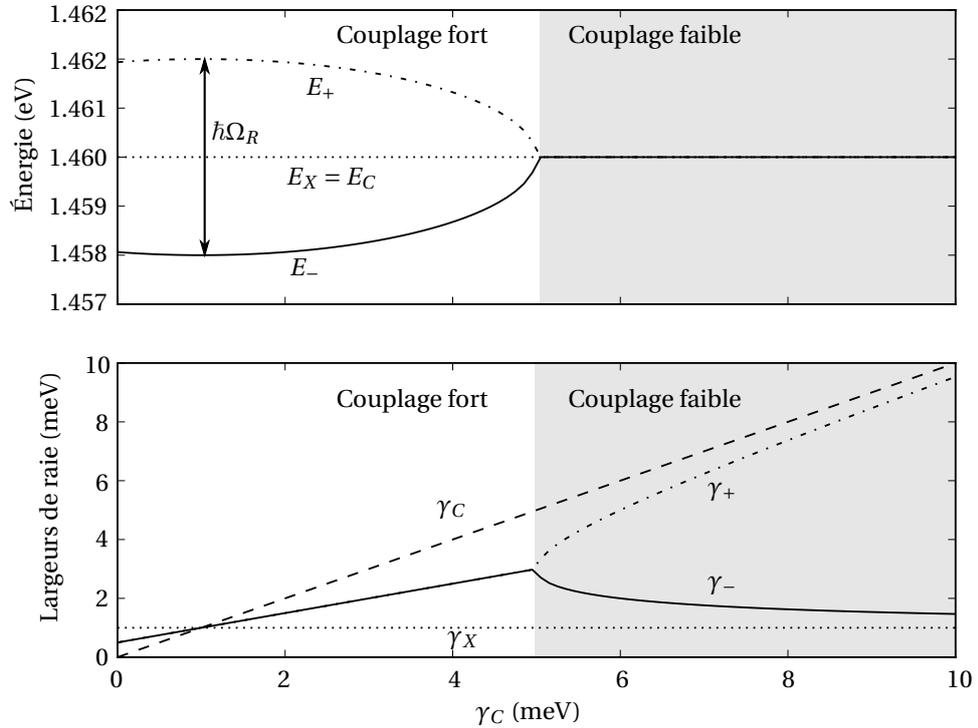


FIGURE 1.16 – Énergies et largeurs de raies de polaritons en fonction de la largeur de raie de la cavité  $\gamma_C$ . Nous avons fixé  $E_C = E_X = 1.460$  eV,  $\hbar\Omega_R = 4$  meV,  $\gamma_X = 1$  meV. Notons le passage au couplage faible pour  $\gamma_C > 5$  meV, c'est-à-dire quand  $|\gamma_C - \gamma_X| > \hbar\Omega_R$ .

[35]). Dans le cas limite où la résonance excitonique est saturée, il faut a priori revenir à une description en termes de photons, d'électrons et de trous (déjà mentionné dans la partie 1.2.4).

## 1.5 Phénomènes paramétriques en microcavité

Nous avons présenté plus-haut la microcavité comme un résonateur optique dans lequel est placé un milieu non-linéaire, le puits quantique. Les interactions entre les excitons du puits quantique correspondent à un  $\chi^{(3)}$  entre polaritons, ce qui nous permet de faire le lien avec les phénomènes paramétriques présentés dans la partie 1.1 qui débutait ce chapitre.

Dans les microcavités, l'amplification paramétrique a été observée dans le travail pionnier de SAVVIDIS *et al.* [36] (figure 1.17). Un faisceau de pompe excite la branche de polariton basse d'une microcavité planaire à un angle non-nul voisin du point d'inflexion de la dispersion. Un faisceau sonde excitant le bas de la branche de polariton basse, en incidence normale, est alors amplifié de près de deux ordres de grandeur. Un peu plus tard, sans appliquer de sonde, STEVENSON *et al.* [37] ont observé l'apparition spontanée d'une population dans le bas de la branche de polariton basse, ainsi que d'une population complémentaire au vecteur d'onde sym-

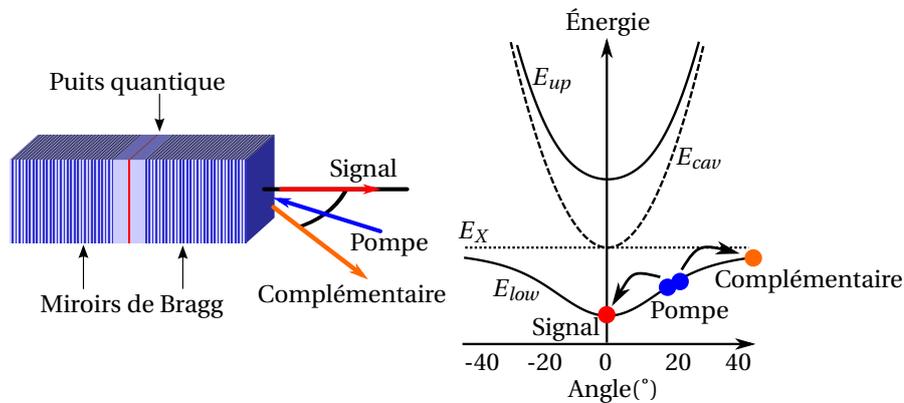


FIGURE 1.17 – Effet d’amplification paramétrique observée dans le travail de SAVVIDIS *et al.* [36] : schéma de la structure, dispersion des polaritons de microcavité et position des modes signal, pompe et complémentaire impliqués. Pour que le processus ait lieu, l’énergie et le vecteur d’onde doivent pouvoir être conservés : la pompe doit donc être à angle non nul et le système doit être dans le régime de couplage fort.

métrique par rapport à la pompe : c’est le processus d’oscillation paramétrique. Dans ces deux processus, l’énergie et le vecteur d’onde dans le plan des couches sont conservés. Les résultats ont été interprétés en termes d’amplification et d’oscillation paramétrique du troisième ordre (en  $\chi^{(3)}$ ), triplement résonnante, selon des modèles théoriques quantiques[19, 38] et classiques[39].

Dans ces microcavités planaires, pour que l’énergie et le vecteur d’onde soient conservés, l’oscillation paramétrique sur la branche de polariton basse implique que la pompe pompe soit réalisé à un angle d’incidence non nul. Ceci limite les possibilités d’intégration du dispositif, pour lequel il serait souhaitable de pouvoir exciter la structure en incidence normale. Le couplage fort est également indispensable pour maintenir l’inflexion sur la branche basse de polariton qui permet la conservation de l’énergie et du vecteur d’onde. Dans les microcavités planaires de GaAs, il faut donc rester à une température cryogénique pour observer cette oscillation. Enfin, l’énergie des polaritons complémentaires est très proche de la transition excitonique, ces polaritons ont donc une forte composante excitonique, de sorte que le faisceau complémentaire sortant de la cavité a une intensité nettement plus faible que le faisceau signal. Ainsi ces deux faisceaux générés sont très déséquilibrés en intensité. Or, nous verrons plus tard que si les faisceaux produits par l’oscillation sont supposés être quantiquement corrélés (partie 1.6.6), un fort déséquilibre en intensité réduit considérablement l’espoir de voir ces corrélations quantiques (partie 1.6.5).

Pour toutes ces raisons, des recherches ultérieures ont porté sur l’idée de structurer des cavités planaires pour contourner ces restrictions. La structuration pour l’observation d’effets paramétriques a d’abord été abordée dans les fils photoniques [40–42]. Dans ces fils, une gravure latérale crée un confinement qui fait apparaître un ensemble de branches de polaritons, entre lesquelles a été observée l’oscillation paramétrique interbranches, dégénérée en angle (figure 1.18). Similairement, l’os-

cillation paramétrique interbranches a été observée récemment dans des micropiliers où le confinement latéral a lieu dans les deux directions [43]. Au Laboratoire Pierre Aigrain, les microcavités couplées ont été étudiées pour observer l'oscillation paramétrique interbranches [44, 45]. L'idée consiste ici à créer une structure composée de plusieurs microcavités empilées, couplées par les miroirs intermédiaires. Le couplage fait apparaître des modes délocalisés sur toutes les cavités, entre lesquels a aussi été observée l'oscillation paramétrique interbranche, dégénérée en énergie (figure 1.19). Dans ces deux systèmes (cavités gravées et cavités couplées), le couplage fort n'est plus indispensable puisque c'est la structuration photonique qui fournit les modes aux bonnes énergies et vecteurs d'onde pour que ces quantités soient conservés dans le processus paramétrique. De plus, le pompage peut avoir lieu en incidence normale, ce qui permet d'envisager la création d'un dispositif intégré. Malgré tout, le processus crée toujours une paires de faisceaux très déséquilibrés.

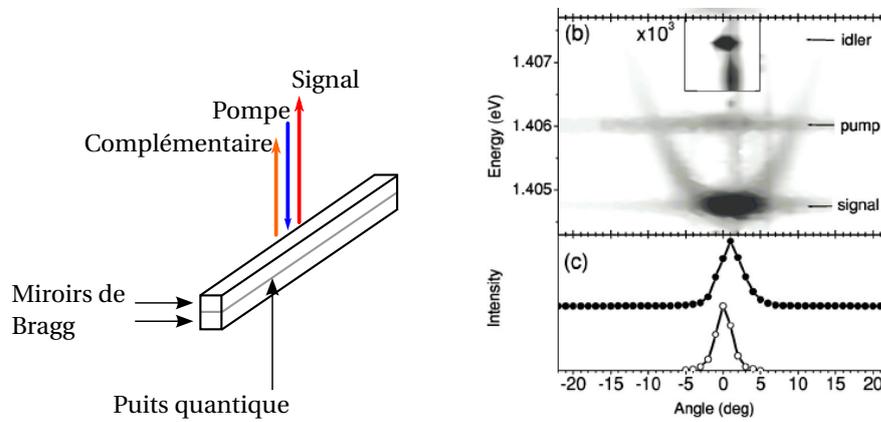


FIGURE 1.18 – Effet d'oscillation paramétrique interbranches, dégénérée en angle, observée dans le travail de DASBACH *et al.* [42] sur un échantillon de fils photoniques : schéma de la structure, dispersion de luminescence expérimentale sur laquelle on observe la position des modes signal, pompe et complémentaire.

Pour permettre aux faisceaux d'être équilibrés, au Laboratoire Pierre Aigrain a été étudiée l'oscillation paramétrique interbranches dégénérée en énergie dans une microcavité triple [46] (figure 1.20). Cette fois les faisceaux générés sont à la même énergie, donc ils ont la même composante excitonique, et les intensités des faisceaux lumineux sortants sont égales. Cette situation est tout à fait favorable à l'étude des corrélations quantiques entre les faisceaux générés. De plus les faisceaux sont séparables spatialement puisqu'ils se propagent dans des directions différentes. Ceci facilite les mesures de bruit en comparaison de toutes les configurations dégénérées en angle. Il est donc très intéressant de poursuivre cette étude pour approfondir les propriétés de l'oscillation paramétrique dans ces systèmes et établir l'existence des corrélations quantiques.

Dans cette thèse, nous poursuivons l'étude des microcavités structurées. Nous présentons la mise en évidence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie dans des fils photoniques au chapitre 3. Dans le chapitre 4, nous présenterons nos résultats sur l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie dans des microcavités

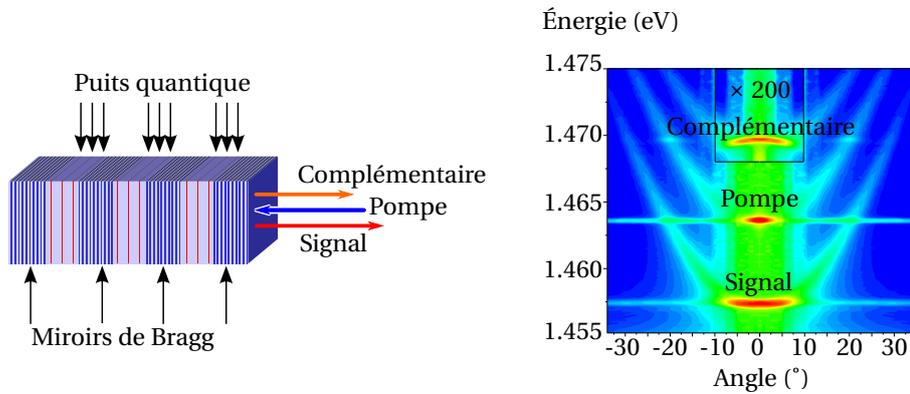


FIGURE 1.19 – Effet d'oscillation paramétrique interbranches, dégénérée en angle, observée dans le travail de DIEDERICHS *et al.* [45] sur un échantillon de microcavité triple : schéma de la structure, dispersion de luminescence expérimentale sur laquelle on observe la position des modes signal, pompe et complémentaire.

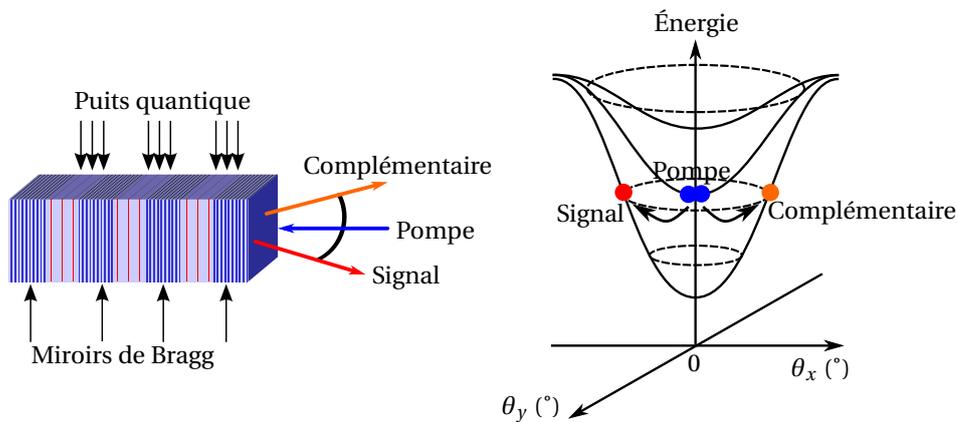


FIGURE 1.20 – Effet d'oscillation paramétrique interbranches, dégénérée en énergie, observée dans le travail de DIEDERICHS [46] sur un échantillon de microcavité triple : schéma de la structure, dispersion des trois branches basses de polaritons sur laquelle on observe la position des modes signal, pompe et complémentaire.

couplées, d'abord en montrant l'existence de cette oscillation à basse température, puis en s'attardant sur la possibilité de voir le phénomène à température ambiante. Enfin, dans le chapitre 5, nous utiliserons l'amplification paramétrique dans une microcavité couplée pour étudier la physique des interactions entre polaritons, résolue en polarisation.

## 1.6 Fluctuations d'intensité et corrélations

Jusqu'ici, nous avons détaillé les phénomènes non-linéaires, en termes de valeurs moyennes, ou encore de populations de polaritons. Un pan entier d'applications des systèmes d'optique non-linéaires est pourtant lié aux notions de fluctuations, de bruit, de corrélations, qui correspondent à l'étude des variations des grandeurs du système autour de leur valeur moyenne. En particulier, on s'intéressera aux fluctuations d'intensité des faisceaux produits par l'oscillation paramétrique dans les microcavités, et on s'efforcera de décrire le régime quantique où deux faisceaux sont dits *jumeaux*.

Parmi les applications des faisceaux jumeaux, citons les mesures au-delà du bruit quantique standard, la cryptographie quantique en variables continues, les mesures quantiques non destructives, ou encore l'obtention d'une source de photons uniques dits "annoncés". Un traitement plus exhaustif des fluctuations quantiques et de leurs applications apparaît dans les références [2, 3, 47].

Dans cette partie, nous présentons donc les concepts et fixons les notations pour comprendre l'étude du bruit quantique dans les microcavités de semiconducteurs.

### 1.6.1 Introduction au bruit quantique

Un champ électromagnétique classique est représenté par ses deux quadratures  $E_1$  et  $E_2$ , où alternativement, par son amplitude  $E_0$  et sa phase  $\phi$ .  $E_1$  et  $E_2$  sont les coordonnées du champ  $E$  dans le plan de Fresnel, qui est représenté par un point.

$$E = E_1 \cos(\omega t) + E_2 \sin(\omega t) = E_0 \cos(\omega t + \phi) \quad (1.72)$$

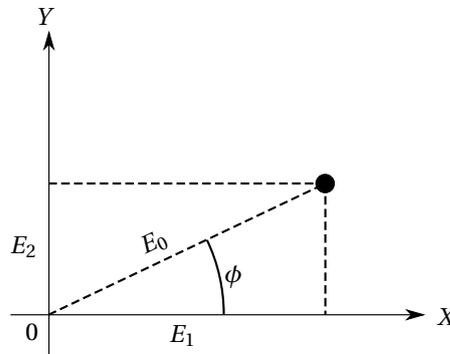


FIGURE 1.21 – Un champ classique est un point dans le plan de Fresnel.

Quantiquement, les deux quadratures  $E_1$  et  $E_2$  sont des opérateurs hérmitiens conjugués, comme le sont la position  $x$  et l'impulsion  $p$  d'une particule. De ce fait,  $E_1$  et  $E_2$  ne commutent pas, et leurs variances vérifient une inégalité du type de l'inégalité d'Heisenberg :

$$\Delta E_1 \Delta E_2 \geq \mathcal{E}_0^2 \quad (1.73)$$

La constante  $\mathcal{E}_0$  définit l'aire minimale d'incertitude de la représentation du champ dans le diagramme de Fresnel (figure 1.22). Elle correspond aussi au champ électrique d'un seul photon, et on peut l'écrire  $\mathcal{E}_0 = \sqrt{\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V}}$ , où  $\epsilon_0$  est la constante di-

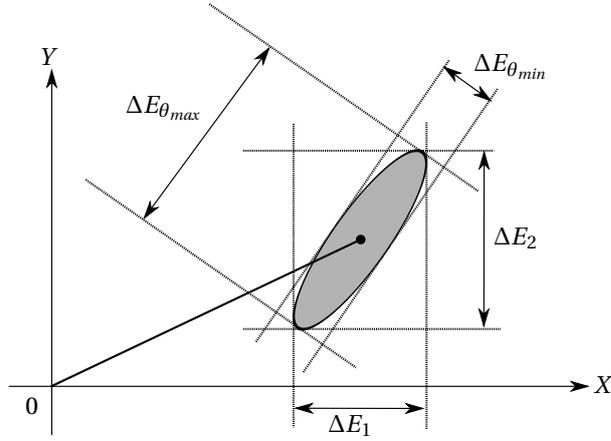


FIGURE 1.22 – Un champ quantique occupe une surface dans le plan de Fresnel. Par exemple, les fluctuations des quadratures peuvent décrire une ellipse, définissant des quadratures de fluctuations minimales et maximales.

électrique du milieu, et  $V$  le volume de quantification.  $\mathcal{E}_0$  sert également à relier les opérateurs de quadrature avec les opérateurs de création et d'annihilation d'un photon,  $a^\dagger$  et  $a$  :

$$E_1 = \mathcal{E}_0(a + a^\dagger) \quad E_2 = -i\mathcal{E}_0(a - a^\dagger) \quad (1.74)$$

$\mathcal{E}_0$  donne donc une échelle naturelle pour les variations des deux quadratures du champ. En particulier, dans l'état du *vide*, où la valeur moyenne du champ est nulle et où il n'y a pas de référence de phase, les deux quadratures  $E_1$  et  $E_2$  sont équivalentes et leurs variances vérifient l'égalité minimale :

$$(\Delta E_1)_{vide} = (\Delta E_2)_{vide} = \mathcal{E}_0 \quad (1.75)$$

L'état vide est un cas particulier d'état *cohérent*, défini comme état propre de l'opérateur annihilation. Le champ d'un état cohérent diffère de l'état vide est de moyenne non-nulle, mais les variances des quadratures sont les mêmes que dans l'état vide :

$$(\Delta E_1)_{coh} = (\Delta E_2)_{coh} = \mathcal{E}_0 \quad (1.76)$$

Un état cohérent peut donc être vu comme un champ *classique*, parfaitement déterminé, auquel se superpose les fluctuations quantiques du vide. Plus généralement, les sources habituelles ou "classiques" produisent des états dans lesquels aucune quadrature n'est privilégiée par rapport à l'autre :

$$(\Delta E_1)_{class} = (\Delta E_2)_{class} \geq \mathcal{E}_0 \quad (1.77)$$

Inversement, on atteint le régime quantique quand les variations d'une des quadratures deviennent plus petites que la limite formée par  $\mathcal{E}_0$ , qui est précisément appelée *limite quantique standard* (ou *shot noise* en anglais, en référence au bruit de grenaille dont nous parlerons plus bas). Un tel état est dit *comprimé* (*squeezed* en anglais). Notons que le produit des variances restent toujours supérieur ou égal à  $\mathcal{E}_0^2$ , même si l'une d'entre elles passe sous la limite standard. Dans le plan de Fresnel, un état comprimé est représenté, non plus par un disque, mais par une ellipse dont le petit axe correspond à la quadrature où la réduction de bruit est maximale.

### 1.6.2 Bruit d'intensité

En passant aux coordonnées polaires, on peut décrire le champ par son amplitude et sa phase, ou encore par son intensité  $I = E_0^2 = E_1^2 + E_2^2$  et sa phase. Dans la limite d'un champ intense, on peut *linéariser* chaque quadrature comme étant la somme d'un champ moyen et de fluctuations :  $E = \langle E \rangle + \delta E$ . Les fluctuations d'intensités sont liées aux fluctuations d'amplitude par la relation  $\Delta I^2 = 4 \langle I \rangle \Delta E_0^2$ . Pour un état cohérent intense, on a donc :

$$(\Delta I^2)_{coh} = 4 \langle I \rangle \mathcal{E}_0^2 \quad (1.78)$$

L'intensité  $I$  est précisément la grandeur qu'on mesure en envoyant directement un faisceau sur une photodiode<sup>10 11</sup>. On peut comprendre aussi la notion de bruit quantique standard en utilisant une description corpusculaire, où le faisceau correspond à un flux de photons. Dans ce cas, l'intensité mesurée par un détecteur idéal est une variable aléatoire :

$$I(t) = \sum_k \delta(t - t_k) \quad (1.79)$$

où  $t_k$  est l'instant auquel est détecté le photon  $k$ . Le bruit sur l'intensité est alors complètement caractérisé par la distribution statistique des instants  $t_k$ , ou de manière équivalente par la distribution des délais successifs  $\tau_k = t_k - t_{k-1}$ . La statistique de la variable  $I$  est caractérisée par son *spectre de bruit*  $S_I(\Omega)$ , que l'on mesure physiquement en branchant le signal électrique de la photodiode à un analyseur de spectre<sup>12</sup>. Le spectre de bruit  $S_I$  est défini comme la transformée de Fourier de la fonction d'autocorrélation  $C_I(\tau)$  :

$$C_I(\tau) = \langle I(t)I(t+\tau) \rangle - \langle I(t) \rangle \langle I(t+\tau) \rangle \quad (1.80)$$

$$S_I(\Omega) = \int d\tau e^{i\Omega\tau} C_I(\tau) \quad (1.81)$$

Dans la description corpusculaire, on peut transformer l'expression de  $S_I$  en introduisant le *facteur de Mandel*  $Q(\Omega)$  :

$$S_I(\Omega) = \langle I \rangle (1 + Q(\Omega)) \quad (1.82)$$

$$Q(\Omega) = \frac{1}{\langle I \rangle} \sum_{k \neq k'} \langle e^{i\Omega(t_k - t_{k'})} \rangle - 2i\delta(\Omega) \langle I \rangle \quad (1.83)$$

Le deuxième terme dans le spectre de bruit,  $\langle I \rangle Q(\Omega)$ , correspond aux corrélations temporelles entre photons différents. Dans le cas d'une statistique *poissonnienne*, les délais successifs  $\tau_k$  sont indépendants et le flux moyen de photons est fixé (ce qui est équivalent à distribuer les délais  $\tau_k$  selon une loi de probabilité exponentielle). On peut montrer que  $Q(\Omega) = 0$  pour une telle statistique, et il ne reste que le premier terme dans le spectre  $S_I$ , indépendant de la fréquence et proportionnel à l'intensité moyenne. Ce premier terme correspond au *bruit quantique standard*, et on retiendra donc que c'est le spectre de bruit d'un flux de photons poissonien. Une réduction de bruit par rapport à cette référence poissonnienne correspond à  $Q < 0$ ,

10. Pour les faibles flux de photons, l'intensité n'est plus une variable continue. La mesure devient *digitale*; on parle de comptage de photons.

11. Dans d'autres configurations, comme avec la détection homodyne, on a accès aux autres quadratures du champ

12. En régime de comptage de photons, on peut directement faire une mesure, dite "Start-Stop", des délais  $\tau_k$ .

une augmentation à  $Q > 0$ . On retiendra donc que le facteur de Mandel représente l'écart au bruit quantique standard.

Un faisceau s'écarte donc du bruit quantique standard pour deux raisons possibles : soit les photons ne sont pas indépendants, soit les délais  $\tau_k$  ne sont pas distribués selon une loi de probabilité exponentielle.

Illustrons les écarts au bruit quantique standard par quelques cas particuliers de sources lumineuses.

### Source cohérente

Les photons dans une source cohérente, comme un laser monomode transverse, sont tous dans le même état quantique. Leur statistique d'impact sur le détecteur est précisément poissonnienne et correspond au bruit quantique standard.

### Source thermique

Considérons une source blanche à l'équilibre thermique. Dans une telle source, le facteur d'occupation *moyen* des états quantiques est petit devant 1. Pour un état quantique donné, et dans le cas des photons qui sont des bosons, le facteur d'occupation vaut 0, 1, 2 ou plus, avec une probabilité rapidement décroissante. Quand un nouveau photon est produit, la probabilité qu'il rejoigne l'état vide  $|n_q = 0\rangle$  s'écrit  $|a^\dagger|n_q = 0\rangle|^2 = \alpha^2$ . Par contre, la probabilité qu'il rejoigne l'état  $|n_q = 1\rangle$  déjà occupé par un photon vaut  $|a^\dagger|n_q = 1\rangle|^2 = |\sqrt{2}a^\dagger|n_q = 0\rangle|^2 = 2\alpha^2$ . On en déduit que la probabilité d'avoir un deuxième photon dans un état qui en contient déjà un est le double de celle de voir ce photon occuper un état initialement vide. Ce phénomène est à l'origine du phénomène dit de *regroupement de photons* (*photon bunching* en anglais), qui correspond au fait qu'une source thermique a tendance à produire des photons groupés plutôt qu'aléatoirement répartis, et qui a été observé par Hanbury Brown et Twiss [48–51]. Ce groupement de photons “par paquets” correspond à une statistique sur-poissonnienne, dont le spectre de bruit est plus élevé que la limite quantique standard.

### Fluorescence atomique résonante

Considérons la fluorescence d'un système atomique excité près de sa résonance. Entre deux émissions spontanées successives, l'atome doit retourner à son état fondamental, et ne peut donc pas réémettre immédiatement. Cette dynamique de la transition à deux niveaux implique qu'il est improbable que la détection d'un photon soit suivie d'une deuxième détection dans un délai de l'ordre du temps de vie radiatif du système. On appelle cette situation le *dégroupement de photons* (*photon antibunching* en anglais), ce qui traduit que les photons émis par une fluorescence atomique résonante soit plus régulièrement répartis que dans le faisceau issu d'une source cohérente. La statistique d'une telle source “régulière” est sous-poissonnienne, et son spectre de bruit est sous la limite quantique standard [52, 53].

### 1.6.3 Corrélations entre deux faisceaux

Considérons maintenant le cas où le système est composé de deux champs  $E_1$  et  $E_2$  que l'on peut mesurer séparément. On a alors quatre coordonnées pour décrire le système dans le plan de Fresnel :  $(E_{p1}, E_{q1})$  pour le premier champ,  $(E_{p2}, E_{q2})$  pour

le deuxième. On s'intéresse aux corrélations d'intensité entre les deux champs. Par exemple, une donnée pertinente est l'information obtenue sur l'intensité  $I_2$  après avoir mesuré  $I_1$ . Cette donnée est appelée *variance conditionnelle*, est notée  $\Delta(I_2|I_1)$ , et est liée à la *corrélacion*  $C_{I_1 I_2}$  entre  $I_1$  et  $I_2$

$$\Delta^2(I_2|I_1) = \Delta^2(I_2) - \frac{C_{I_1 I_2}^2}{\Delta^2(I_1)} \quad (1.84)$$

$$C_{I_1 I_2} = \frac{1}{2} \langle I_1 I_2 + I_2 I_1 \rangle - \langle I_1 \rangle \langle I_2 \rangle \quad (1.85)$$

Idéalement, si la fonction de corrélation  $C_{I_1 I_2}$  atteint  $\Delta^2(I_1)\Delta^2(I_2)$ , alors la variance conditionnelle s'annule, et on connaît parfaitement les fluctuations de  $I_2$  en ayant mesuré celles de  $I_1$ . Notons que des faisceaux *classiques* peuvent tout à fait atteindre la limite de corrélation quasi-parfaite définie par  $\Delta^2(I_2|I_1) \ll \Delta^2(I_2), \Delta^2(I_1)$ , en particulier s'ils sont individuellement très bruités. Par contre, il existe une limite quantique que l'on exprime de la façon suivante : on dira que *les corrélacions entre les 2 champs sont dans le régime quantique si, en les mélangeant de manière appropriée, on peut obtenir un champ non-classique, c'est-à-dire dont l'intensité est sous-poissonnienne*. Concrètement, pour deux champs dont les variances sont équilibrées, on aura par exemple des corrélacions quantiques sur la quadrature  $q$  si :

$$G = \frac{\Delta^2 E_{q1}}{\mathcal{E}_0^2} \left( 1 - \frac{C_{E_{q1} E_{q2}}}{\Delta(E_{q1})\Delta(E_{q2})} \right) < 1 \quad (1.86)$$

Cette grandeur  $G$  est appelée *gémélité*. Il faut donc que la corrélation normalisée  $\frac{C_{E_{q1} E_{q2}}}{\Delta(E_{q1})\Delta(E_{q2})}$  soit suffisamment proche de 1 pour atteindre le régime quantique.

On peut réécrire  $G$  sous une autre forme :

$$G = \frac{\Delta^2(E_{q1} - E_{q2})}{2\mathcal{E}_0^2} \quad (1.87)$$

$G < 1$  équivaut donc à  $\Delta^2\left(\frac{E_{q1} - E_{q2}}{\sqrt{2}}\right) < \mathcal{E}_0^2$ . On déduit une autre formulation du critère de corrélation quantique, plus commune : *les champs sont quantiquement corrélés sur la quadrature  $q$  si les fluctuations de la différence des quadratures sont sous la limite quantique standard*. Pour cette raison, les corrélacions quantiques sont l'analogie d'un état comprimé sur la différence des quadratures (on parle de *difference squeezing*).

En particulier, sur la quadrature d'amplitude qui nous intéresse ici, on aura des corrélacions quantiques si *les fluctuations de la différence d'intensité sont sous la limite quantique standard*.<sup>13</sup> Dans l'interprétation corpusculaire, des faisceaux quantiquement corrélés sont des faisceaux formés (au moins partiellement) de paires de photons [54].

13. Deux faisceaux quantiquement corrélés ne sont pas forcément *intriqués*. Il y a en fait une hiérarchie de critères de corrélacions. Le critère le plus facile à atteindre est celui que nous avons présenté ici. Vient ensuite le critère de corrélation permettant une mesure quantique non-destructive (QND) :  $\Delta^2(E_{q2}|E_{q1}) < \mathcal{E}_0^2$ , qui est plus strict sur la gémélité  $G$ . Les critères d'intrication sont encore plus stricts. Celui de Mancini par exemple est une condition sur deux gémélités, de la différence sur une quadrature et de la somme sur la quadrature conjuguée.

### 1.6.4 Effets d'une lame séparatrice sur le bruit d'un faisceau

#### Bruit sur le faisceau transmis

Considérons le cas où un faisceau de statistique donnée, décrite par l'intensité moyenne  $\langle I_I \rangle$  et le facteur de Mandel  $Q_I(\Omega)$ , est incident sur une lame semi-réfléchissante de coefficient de réflexion en intensité  $R$  et de transmission  $T$  (figure 1.23). On s'intéresse à la statistique du faisceau transmis. Son intensité moyenne vaut donc  $\langle I_T \rangle = T \langle I_I \rangle$ . Le spectre de bruit du faisceau incident vaut  $S_I = \langle I_I \rangle (1 + Q_I(\Omega))$ . On peut montrer que le spectre de bruit  $S_T$  du faisceau transmis vaut :

$$S_T = \langle I_T \rangle (1 + Q_T(\Omega)) \quad (1.88)$$

$$Q_T(\Omega) = T Q_I(\Omega) \quad (1.89)$$

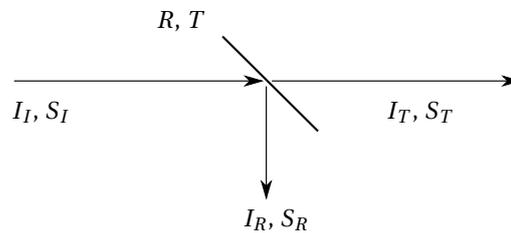


FIGURE 1.23 – Un faisceau traverse une lame séparatrice.

On constate que le faisceau transmis est plus près du bruit quantique standard que le faisceau incident. Ce cas est intéressant parce que les pertes linéaires sont assimilables à l'effet d'une lame réfléchissante. On retiendra donc que les pertes rapprochent un faisceau du bruit quantique standard. Un faisceau sur-poissonien verra son bruit être réduit par la perte, par contre un faisceau sous-poissonien verra son bruit augmenter. Dans les deux cas, le bruit d'un faisceau très atténué tend vers le bruit quantique standard.

#### Bruit sur la somme et la différence

Supposons maintenant que nous utilisons deux détecteurs, placés sur chacune des deux voies de sorties de la lame séparatrice. Nous nous intéressons maintenant à la statistique de la différence et de la somme des intensités.

Dans le cas particulier d'une lame 50/50 ( $T = R = \frac{1}{2}$ ), on peut montrer que le bruit de la somme est égal au bruit du faisceau incident, tandis que le bruit de la différence est égal au bruit quantique standard. Ce dernier point vient du processus de partition réalisé par la lame : elle sépare *aléatoirement* et complètement *indépendamment* les photons vers l'une ou l'autre des deux voies. Expérimentalement, on peut donc comparer simplement le bruit d'intensité d'un faisceau et le comparer au shot noise : il suffit de mesurer le spectre de bruit de la somme et de la différence des intensités à la sortie d'une lame 50/50 pour obtenir, respectivement, le bruit du faisceau et le bruit quantique standard.

### 1.6.5 Effets des pertes sur les corrélations entre deux faisceaux

On peut montrer que les pertes sur deux faisceaux "dégradent" les corrélations qu'on cherche à mesurer, et tout particulièrement si ces pertes sont déséquilibrées.

Les calculs sont présentés dans l'annexe A. En résumé, des pertes équilibrées font tendre les fluctuations de la différence d'intensité vers le bruit quantique standard. Si les faisceaux individuels présentent un excès de bruit, comme c'est le cas dans nos mesures sur les fils photoniques au chapitre 3, alors des pertes déséquilibrées polluent les fluctuations de la différence d'intensité avec cet excès de bruit. Ainsi, des pertes déséquilibrées font facilement disparaître le régime de corrélations quantiques.

### 1.6.6 Effets des interactions non-linéaires sur le bruit

Établissons finalement le lien entre les milieux optiques non-linéaires, présentés dans la partie 1.1, et les modifications des fluctuations quantiques d'un champ électromagnétique. On cherchera en particulier à montrer comment un hamiltonien d'interaction quadratique en populations, qui correspond au plus petit ordre de perturbation, influe sur les fluctuations des quadratures  $X$  et  $Y$  d'un champ. Dans un cas général, on peut montrer qu'un hamiltonien quadratique transforme un état minimal (c'est-à-dire vérifiant  $\Delta E_1 \Delta E_2 = \mathcal{E}_0^2$ ) en un autre état minimal, mais en changeant les fluctuations sur chaque quadrature, conduisant à une réduction de bruit sur l'une et à une augmentation correspondante sur l'autre.

On présentera ici plus précisément comment un processus d'amplification en  $\chi^{(2)}$  puis comment un processus de mélange à trois ondes en  $\chi^{(3)}$  peuvent produire respectivement un faisceau dans un état comprimé, ou deux faisceaux jumeaux.

#### Hamiltonien quadratique

On peut montrer qu'un hamiltonien quadratique effectue une transformation linéaire sur les quadratures [47], qui s'exprime généralement :

$$\begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} (t) = M \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix} (t_0) \quad (1.90)$$

La matrice  $M$  est une matrice 2x2 unitaire. En représentation de Wigner, on associe à  $X$  et  $Y$  les variables classiques  $x$  et  $y$ . On peut montrer que leurs fluctuations  $\delta x$  et  $\delta y$  vérifient la même loi linéaire :

$$\begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \end{pmatrix} (t) = M \begin{pmatrix} \delta x \\ \delta y \end{pmatrix} (t_0) \quad (1.91)$$

Enfin, les variances des fluctuations, qu'on rassemble dans la matrice de covariance  $V = \begin{pmatrix} \langle \delta x^2 \rangle & \langle \delta x \delta y \rangle \\ \langle \delta x \delta y \rangle & \langle \delta y^2 \rangle \end{pmatrix}$ , sont elles-aussi transformées par la matrice  $M$  :

$$V(t) = M V(t_0) M^T \quad (1.92)$$

On peut donc caractériser complètement l'évolution des variances des quadratures à partir du hamiltonien.

#### Amplification paramétrique dégénérée

Un milieu de type  $\chi^{(2)}$  sondé par un champ à la fréquence  $\omega$  représenté par l'opérateur  $a$ , et soumis à un champ de pompe à la fréquence  $2\omega$  représenté par un champ  $P_0$  classique (dans la limite où le champ de pompe est beaucoup plus intense

que la sonde), peut être décrit par le hamiltonien, qui décrit en seconde quantification le mécanisme présenté dans l'approche classique que l'on a présenté dans la partie 1.1.3 :

$$H = \hbar\omega a^\dagger a - i\hbar\frac{\xi}{2}(P_0 e^{2i\omega t} a^{\dagger 2} - P_0^* e^{-2i\omega t} a^2) \quad (1.93)$$

En représentation d'interaction où on introduit l'opérateur  $\tilde{a} = ae^{i\omega t}$ , ce hamiltonien se réécrit :

$$H_{int} = -i\hbar\frac{\xi}{2}(P_0 \tilde{a}^{\dagger 2} - P_0^* \tilde{a}^2) \quad (1.94)$$

L'équation de Heisenberg correspondante  $\frac{d\tilde{a}}{dt} = \frac{i}{\hbar}[H_{int}, \tilde{a}]$  s'écrit :

$$\frac{d\tilde{a}}{dt} = -\xi P_0 \tilde{a}^\dagger \quad (1.95)$$

Notons  $g = \xi P_0$ . En supposant que  $g$  est un réel positif (par un choix de la référence des phases), les équations pour les quadratures  $X = \frac{\tilde{a} + \tilde{a}^\dagger}{\sqrt{2}}$  et  $Y = \frac{\tilde{a} - \tilde{a}^\dagger}{i\sqrt{2}}$  sont les suivantes :

$$\frac{dX}{dt} = -gX \quad (1.96a)$$

$$\frac{dY}{dt} = +gY \quad (1.96b)$$

et les solutions sont immédiates :

$$X(t) = X(0)e^{-gt} \quad (1.97a)$$

$$Y(t) = Y(0)e^{+gt} \quad (1.97b)$$

Ainsi on trouve un phénomène d'amplification paramétrique. L'amplification dépend de la phase : il y a amplification sur une quadrature, et atténuation sur la quadrature conjuguée.

Pour estimer les fluctuations, il reste donc à évaluer les éléments de la matrice de covariance  $V$ . La matrice  $M$  présentée au paragraphe précédent est ici diagonale :

$$\begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix}(t) = \begin{pmatrix} e^{-g(t-t_0)} & 0 \\ 0 & e^{+g(t-t_0)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix}(t_0) = M \begin{pmatrix} X \\ Y \end{pmatrix}(t_0) \quad (1.98)$$

Supposons que l'état initial soit le vide quantique ou un état cohérent :

$$\langle \delta x^2 \rangle(t_0) = \frac{1}{2} \quad (1.99a)$$

$$\langle \delta y^2 \rangle(t_0) = \frac{1}{2} \quad (1.99b)$$

$$\langle \delta x \delta y \rangle(t_0) = 0 \quad (1.99c)$$

Avec l'équation 1.92, on montre alors que les variances au temps  $t$  sont :

$$\langle \delta x^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{-2gt} \quad (1.100a)$$

$$\langle \delta y^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{+2gt} \quad (1.100b)$$

$$\langle \delta x \delta y \rangle(t) = 0 \quad (1.100c)$$

Ainsi on obtient un état comprimé sur la quadrature  $Y$ , tandis que la variance de la quadrature  $X$  augmente de sorte que l'état reste minimal.

### Mélange à 3 ondes

Considérons un deuxième cas simple, plus proche de la configuration décrite dans cette thèse, où un milieu en  $\chi^{(3)}$  est soumis à un champ de pompe  $P_0$  classique à la fréquence  $\omega_p$ , produisant deux faisceaux signal et complémentaire décrits par des opérateurs  $a$  et  $b$ , lentement variables autour des fréquences  $\omega_s$  et  $\omega_c$ . On s'intéresse au processus durant lequel deux photons de pompe co-propageants sont convertis en un photon signal et un photon complémentaire. Ce processus vérifie la conservation de l'énergie et de l'impulsion :  $2\omega_p = \omega_s + \omega_c$  et  $2k_p = k_s + k_c$ . L'évolution suit alors le hamiltonien suivant :

$$H = \hbar\omega_s a^\dagger a + \hbar\omega_c b^\dagger b - i\hbar\frac{\xi}{2}(P_0^2 e^{-2\omega_p t} a^\dagger b^\dagger + P_0^{*2} e^{2\omega_p t} ab) \quad (1.101)$$

En représentation d'interaction, ce hamiltonien se réécrit :

$$H_{int} = -i\hbar\frac{\xi}{2}(P_0^2 \tilde{a}^\dagger \tilde{b}^\dagger - P_0^{*2} \tilde{a} \tilde{b}) \quad (1.102)$$

On obtient les équations d'évolution couplées :

$$\frac{d\tilde{a}}{dt} = -\frac{\xi P_0^2}{2} \tilde{b}^\dagger \quad (1.103)$$

$$\frac{d\tilde{b}}{dt} = -\frac{\xi P_0^2}{2} \tilde{a}^\dagger \quad (1.104)$$

$$(1.105)$$

Notons  $g = \frac{\xi P_0^2}{2}$ . En supposant que  $g$  est un réel positif (par un choix de la référence des phases), les équations sont découplées pour les modes symétrique  $\alpha = \frac{\tilde{a} + \tilde{b}}{\sqrt{2}}$  et antisymétrique  $\beta = \frac{\tilde{a} - \tilde{b}}{\sqrt{2}}$  :

$$\frac{d\alpha}{dt} = -g\alpha^\dagger \quad (1.106)$$

$$\frac{d\beta}{dt} = +g\beta^\dagger \quad (1.107)$$

Enfin, ces équations se simplifient pour les quadratures  $X_\alpha = \frac{\alpha + \alpha^\dagger}{\sqrt{2}}$ ,  $Y_\alpha = \frac{\alpha - \alpha^\dagger}{i\sqrt{2}}$ ,  $X_\beta = \frac{\beta + \beta^\dagger}{\sqrt{2}}$ ,  $Y_\beta = \frac{\beta - \beta^\dagger}{i\sqrt{2}}$  :

$$\frac{dX_\alpha}{dt} = -gX_\alpha \quad \frac{dX_\beta}{dt} = +gX_\beta \quad (1.108)$$

$$\frac{dY_\alpha}{dt} = +gY_\alpha \quad \frac{dY_\beta}{dt} = -gY_\beta \quad (1.109)$$

Les solutions sont :

$$X_\alpha(t) = e^{-gt} X_\alpha(0) \quad X_\beta(t) = e^{+gt} X_\beta(0) \quad (1.110)$$

$$Y_\alpha(t) = e^{+gt} Y_\alpha(0) \quad Y_\beta(t) = e^{-gt} Y_\beta(0) \quad (1.111)$$

On note une réduction sur la quadrature  $X$  de la somme  $\alpha$ , et une amplification sur la même quadrature  $X$  de la différence  $\beta$ .

Comme dans le paragraphe précédent, les matrices  $M_\alpha$  et  $M_\beta$  sont diagonales. Finalement, on peut calculer l'évolution des matrices de covariance  $V_\alpha$  et  $V_\beta$ . En supposant que les états initiaux sont des états vides ou cohérents, on obtient :

$$\langle \delta x_\alpha^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{-2gt} \qquad \langle \delta x_\beta^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{+2gt} \qquad (1.112)$$

$$\langle \delta y_\alpha^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{+2gt} \qquad \langle \delta y_\beta^2 \rangle(t) = \frac{1}{2} e^{-2gt} \qquad (1.113)$$

$$\langle \delta x_\alpha \delta y_\alpha \rangle(t) = 0 \qquad \langle \delta x_\beta \delta y_\beta \rangle(t) = 0 \qquad (1.114)$$

Sur la figure 1.24, on représente l'évolution temporelle des états par leurs trajectoires dans l'espace des phases et par la déformation des ellipses décrivant leurs fluctuations. Notons d'abord que les ellipses de bruit de  $a$  et  $b$  restent symétriques, et grandissent. Notons ensuite l'amplification de la quadrature  $Y$  de la somme  $\alpha$ , si bien que la valeur moyenne de  $\alpha$  est asymptotiquement confondue avec l'axe des  $Y$ . Ainsi, asymptotiquement, la quadrature  $Y$  correspond à la quadrature d'amplitude. Dans le même temps, on note que les fluctuations sur cette même quadrature  $Y$  sont compressées pour la différence  $\beta$  : c'est précisément le phénomène de réduction de bruit de photon : il y a réduction des fluctuations sur la quadrature d'amplitude.

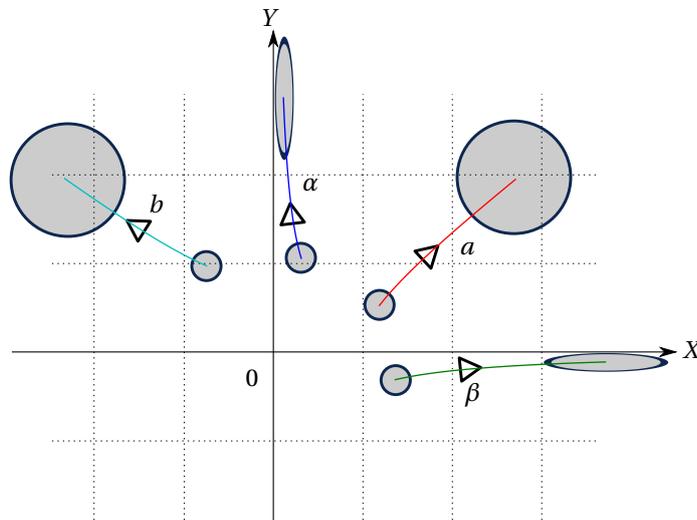


FIGURE 1.24 – Évolution des quadratures et de leurs fluctuations lors du mélange à trois ondes

En pratique, au lieu de mélanger les champs pour mesurer les fluctuations de la quadrature  $X$  de la différence, on mesure les intensités  $I_a$  et  $I_b$ , dont on fait ensuite la différence électroniquement (ou numériquement). À partir des variances des quadratures exprimées ci-dessus, on peut montrer que les fluctuations  $\langle \delta L_-^2 \rangle$

de la différence d'intensité  $I_- = I_b - I_a$  sont également comprimées :

$$\frac{\langle \delta I_-^2 \rangle(t)}{I_-(t)} = \frac{\langle \delta I_-^2 \rangle(0)}{I_-(0)} e^{-2gt} \xrightarrow{t \rightarrow +\infty} 0 \quad (1.115)$$

Les deux champs sont alors dits *quantiquement corrélés* ou *jumeaux*<sup>14</sup>.

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons parcouru les concepts d'optique non-linéaire, de microcavités et de bruit quantique. Nous avons discuté les caractéristiques du processus d'oscillation paramétrique, et en particulier quand il est issu d'un milieu en  $\chi^{(3)}$ . Nous avons décrit comment les puits quantiques placés dans une microcavité semiconductrice forment un système qui remplit tous les critères nécessaires à l'oscillation paramétrique optique. Enfin, dans la dernière partie, nous avons étudié les propriétés de fluctuations des champs quantiques, et comment une interaction non-linéaire comme celle ayant lieu dans l'OPO aboutit à des faisceaux quantiquement corrélés, ou jumeaux. Dans la suite de cette thèse, on s'intéressera à observer expérimentalement tous ces phénomènes dans des microcavités, avec l'objectif de réaliser à terme une source de faisceaux jumeaux.

## Références

1. SHEN, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley-Interscience, 2002).
2. SCULLY, M. O. & ZUBAIRY, M. S. *Quantum optics* (Cambridge University Press, 1997).
3. WALLS, D. F. & MILBURN, G. J. *Quantum optics* (Springer, 2008).
4. JOFFRE, M. *Optique non-linéaire en régime continu et femtoseconde* <<http://www.enseignement.polytechnique.fr/profs/physique/Manuel.Joffre/onl/>>.
5. BOYD, R. W. *Nonlinear optics* (Academic Press, 2008).
6. ABRAMS, R. L. & LIND, R. C. Degenerate four-wave mixing in absorbing media. *Optics Letters* **2**, 94–96 (1978).
7. ASHCROFT, N. & MERMIN, N. *Physique des solides* (L'Editeur : EDP Sciences, 2002).
8. HANSRYD, J., ANDREKSON, P., WESTLUND, M., JIE, L. & HEDEKVIST, P. Fiber-based optical parametric amplifiers and their applications. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **8**, 506–520 (2002).
9. AGRAWAL, G. P. *Nonlinear fiber optics* (Academic Press, 2007).
10. SCHMITT-RINK, S. & CHEMLA, D. S. Collective Excitations and the Dynamical Stark Effect in a Coherently Driven Exciton System. *Physical Review Letters* **57**, 2752 (1986).

14. Dans une cavité, la réduction de bruit du mélange à 3 ondes est exaltée aux fréquences petites devant la fréquence de coupure de la cavité. On peut notamment montrer qu'un milieu décrit par le hamiltonien que dans le paragraphe 1.6.6, et placé dans une cavité, produit au-delà du seuil d'oscillation paramétrique une paire de faisceaux jumeaux qui présentent une fluctuation nulle sur la différence d'intensité à basse fréquence.

11. LINDBERG, M. & KOCH, S. W. Effective Bloch equations for semiconductors. *Physical Review B* **38**, 3342 (1988).
12. HANAMURA, E. Very large optical nonlinearity of semiconductor microcrystallites. *Physical Review B* **37**, 1273 (1988).
13. LINDBERG, M., HU, Y. Z., BINDER, R. & KOCH, S. W.  $\chi^{(3)}$  formalism in optically excited semiconductors and its applications in four-wave-mixing spectroscopy. *Physical Review B* **50**, 18060 (1994).
14. TASSONE, F. & YAMAMOTO, Y. Exciton-exciton scattering dynamics in a semiconductor microcavity and stimulated scattering into polaritons. *Physical Review B* **59**, 10830 (1999).
15. ROCHAT, G., CIUTI, C., SAVONA, V., PIERMAROCCHI, C., QUATTROPANI, A. & SCHWENDIMANN, P. Excitonic Bloch equations for a two-dimensional system of interacting excitons. *Physical Review B* **61**, 13856 (2000).
16. HAUG, H. & KOCH, S. W. *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors* (World Scientific, 2004).
17. COMBESCOT, M. & BETBEDER-MATIBET, O. The effective bosonic Hamiltonian for excitons reconsidered. *Europhysics Letters (EPL)* **58**, 87–92 (2002).
18. GLAZOV, M. M., OUERDANE, H., PILOZZI, L., MALPUECH, G., KAVOKIN, A. V. & D'ANDREA, A. Polariton-polariton scattering in microcavities : A microscopic theory. *Physical Review B* **80**, 155306 (2009).
19. CIUTI, C., SCHWENDIMANN, P. & QUATTROPANI, A. Theory of polariton parametric interactions in semiconductor microcavities. *Semiconductor Science and Technology* **18**, S279–S293 (2003).
20. USUI, T. Excitations in a High Density Electron Gas. I. *Progress of Theoretical Physics* **23**, 787–798 (1960).
21. KARR, J. P., BAAS, A. & GIACOBINO, E. Twin polaritons in semiconductor microcavities. *Physical Review A* **69**, 063807 (2004).
22. CHEMLA, D., MILLER, D., SMITH, P., GOSSARD, A. & WIEGMANN, W. Room temperature excitonic nonlinear absorption and refraction in GaAs/AlGaAs multiple quantum well structures. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **20**, 265–275 (1984).
23. PEYGHAMBARIAN, N., GIBBS, H. M., JEWELL, J. L., ANTONETTI, A., MIGUS, A., HULIN, D. & MYSYROWICZ, A. Blue Shift of the Exciton Resonance due to Exciton-Exciton Interactions in a Multiple-Quantum-Well Structure. *Physical Review Letters* **53**, 2433 (1984).
24. SCHMITT-RINK, S., CHEMLA, D. S. & MILLER, D. A. B. Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures. *Physical Review B* **32**, 6601 (1985).
25. BORN, M., WOLF, E. & BHATIA, A. B. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light* (CUP Archive, 2000).
26. HAYES, G. R., HAACKE, S., KAUER, M., STANLEY, R. P., HOUDRÉ, R., OESTERLE, U. & DEVEAUD, B. Resonant Rayleigh scattering versus incoherent luminescence in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **58**, R10175 (1998).
27. WHITTAKER, D. M. Resonant Rayleigh scattering from a disordered microcavity. *Physical Review B* **61**, R2433 (2000).

28. SHCHEGROV, A. V., BLOCH, J., BIRKEDAL, D. & SHAH, J. Theory of Resonant Rayleigh Scattering from Semiconductor Microcavities : Signatures of Disorder. *Physical Review Letters* **84**, 3478 (2000).
29. HOPFIELD, J. J. Theory of the Contribution of Excitons to the Complex Dielectric Constant of Crystals. *Physical Review* **112**, 1555 (1958).
30. COHEN-TANNOUDJI, C., DUPONT-ROC, J. & GRYNBERG, G. dans *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications* (Wiley, 1998).
31. HOUDRÉ, R., GIBERNON, J. L., PELLANDINI, P., STANLEY, R. P., OESTERLE, U., WEISBUCH, C., O'GORMAN, J., ROYCROFT, B. & ILEGEMS, M. Saturation of the strong-coupling regime in a semiconductor microcavity : Free-carrier bleaching of cavity polaritons. *Physical Review B* **52**, 7810 (1995).
32. TREDICUCCI, A., CHEN, Y., PELLEGRINI, V., BÖRGER, M. & BASSANI, F. Optical bistability of semiconductor microcavities in the strong-coupling regime. *Physical Review A* **54**, 3493 (1996).
33. BUTTÉ, R., DELALLEAU, G., TARTAKOVSKII, A. I., SKOLNICK, M. S., ASTRATOV, V. N., BAUMBERG, J. J., MALPUECH, G., CARLO, A. D., KAVOKIN, A. V. & ROBERTS, J. S. Transition from strong to weak coupling and the onset of lasing in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **65**, 205310 (2002).
34. GURIOLI, M., CAVIGLI, L., KHITROVA, G & GIBBS, H. M. Bistable optical response in quantum well semiconductor microcavity. *Semiconductor Science and Technology* **19**, S345–S347 (2004).
35. TAJ, D., LECOMTE, T., DIEDERICHS, C., ROUSSIGNOL, P., DELALANDE, C. & TIGNON, J. Interbranch parametric oscillation in the weak coupling regime for semiconductor vertical multimicrocavities. *Physical Review B* **80**, 081308 (2009).
36. SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J., STEVENSON, R. M., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M. & ROBERTS, J. S. Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier. *Physical Review Letters* **84**, 1547 (2000).
37. STEVENSON, R. M., ASTRATOV, V. N., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M., EMAM-ISMAIL, M., TARTAKOVSKII, A. I., SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J. & ROBERTS, J. S. Continuous Wave Observation of Massive Polariton Redistribution by Stimulated Scattering in Semiconductor Microcavities. *Physical Review Letters* **85**, 3680 (2000).
38. CIUTI, C., SCHWENDIMANN, P., DEVEAUD, B. & QUATTROPANI, A. Theory of the angle-resonant polariton amplifier. *Physical Review B* **62**, R4825 (2000).
39. WHITTAKER, D. M. Classical treatment of parametric processes in a strong-coupling planar microcavity. *Physical Review B* **63**, 193305 (2001).
40. DASBACH, G., SCHWAB, M., BAYER, M., KRIZHANOVSKII, D. & FORCHEL, A. Tailoring the polariton dispersion by optical confinement : Access to a manifold of elastic polariton pair scattering channels. *Physical Review B* **66**, 201201 (2002).
41. DASBACH, G. *Spectroscopy of Polaritonic Excitations in Semiconductors* thèse de doct. (Technische Universität Dortmund, 2003).
42. DASBACH, G., DIEDERICHS, C., TIGNON, J., CIUTI, C., ROUSSIGNOL, P., DELALANDE, C., BAYER, M. & FORCHEL, A. Polarization inversion via parametric scattering in quasi-one-dimensional microcavities. *Physical Review B* **71**, 161308 (2005).

43. FERRIER, L., PIGEON, S., WERTZ, E., BAMBA, M., SENELLART, P., SAGNES, I., LEMAÎTRE, A., CIUTI, C. & BLOCH, J. Polariton parametric oscillation in a single micropillar cavity. *Applied Physics Letters* **97**, 031105 (2010).
44. DIEDERICHS, C. & TIGNON, J. Design for a triply resonant vertical-emitting micro-optical parametric oscillator. *Applied Physics Letters* **87**, 251107–3 (2005).
45. DIEDERICHS, C., TIGNON, J., DASBACH, G., CIUTI, C., LEMAÎTRE, A., BLOCH, J., ROUSSIGNOL, P. & DELALANDE, C. Parametric oscillation in vertical triple microcavities. *Nature* **440**, 904–907 (2006).
46. DIEDERICHS, C. *Oscillation paramétrique optique et génération de photons jumeaux dans des microcavités de semiconducteurs* thèse de doct. (2007).
47. REYNAUD, S. Introduction à la réduction du bruit quantique. *Annales de Physique* **15**, 100 (1990).
48. BROWN, R. H. & TWISS, R. Q. Interferometry of the Intensity Fluctuations in Light. I. Basic Theory : The Correlation between Photons in Coherent Beams of Radiation. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* **242**, ArticleType : research-article / Full publication date : Nov. 5, 1957 / Copyright © 1957 The Royal Society 300–324 (1957).
49. BROWN, R. H. & TWISS, R. Q. Interferometry of the Intensity Fluctuations in Light II. An Experimental Test of the Theory for Partially Coherent Light. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* **243**, 291–319 (1958).
50. FANO, U. Quantum Theory of Interference Effects in the Mixing of Light from Phase-Independent Sources. *American Journal of Physics* **29**, 539 (1961).
51. MORGAN, B. L. & MANDEL, L. Measurement of Photon Bunching in a Thermal Light Beam. *Physical Review Letters* **16**, 1012 (1966).
52. MANDEL, L. Sub-Poissonian photon statistics in resonance fluorescence. *Optics Letters* **4**, 205–207 (1979).
53. SHORT, R. & MANDEL, L. Observation of Sub-Poissonian Photon Statistics. *Physical Review Letters* **51**, 384 (1983).
54. FABRE, C. dans *Annales de l'École prédoctorale d'optique quantique* (2007).



## Chapitre 2

# Techniques expérimentales

Nous décrirons dans ce chapitre les principales méthodes expérimentales employées et améliorées dans cette thèse. Nous aborderons brièvement la fabrication des échantillons. Nous présenterons le dispositif d'excitation et de visualisation de l'émission, qui nous permet en particulier d'observer le plan de Fourier et de résoudre l'émission à la fois angulairement et spectralement en une seule acquisition. Nous nous concentrerons enfin sur le dispositif de mesure destiné à la question du bruit quantique des faisceaux générés par les processus paramétriques. Nous détaillerons les propriétés des photodiodes et des amplificateurs bas bruit mis au point et utilisés dans cette thèse.

### 2.1 Fabrication des échantillons

La structure générale des échantillons de microcavités planaires a été décrite dans la partie 1.4. Ici le processus de fabrication sera détaillé. À part le clivage et le collage finaux, toutes les étapes décrites ici ont été réalisées au Laboratoire de Photonique et Nanostructures par Aristide Lemaître et Jacqueline Bloch, ainsi que Pascale Senellart et Isabelle Sagnes pour la gravure.

Les microcavités étudiées dans cette thèse sont toutes basées sur une structure diélectrique planaire produite par épitaxie par jet moléculaire, technique de croissance qui permet de déposer un film de semiconducteur monocristallin sur un substrat monocristallin. Dans une chambre sous vide, les éléments sources (Gallium, Arsenic, etc.) sous forme solide sont chauffés jusqu'à sublimation, se condensent sur le substrat sous forme de couches, dont l'épaisseur est contrôlée jusqu'à la couche atomique près. L'uniformité de l'épaisseur des couches est garantie par la rotation rapide du substrat pendant la croissance. Inversement, il est possible d'obtenir un gradient d'épaisseur dans une couche en arrêtant momentanément la rotation du substrat. Ceci permet de varier en particulier la taille de la cavité et donc les longueurs d'onde qui lui sont résonantes. Dans nos échantillons de microcavités multiples utilisés aux chapitres 5 et 4, chaque cavité contient un gradient d'épaisseur qui décale la résonance de 3.6 meV/mm. Les gradients ont tous des directions différentes, ce qui permet d'ajuster la position des cavités de façon indépendante. Dans les échantillons de fils photoniques, il n'y a qu'une cavité et un seul gradient. Nous avons choisi de placer ce gradient dans la direction orthogonale aux fils pour que l'énergie des polaritons soit la même sur toute la longueur de chaque fil (voir cha-

pitre 3). Comme nous l'avons évoqué dans la partie 1.3.1, les microcavités couplées que nous utilisons dans cette thèse sont très épaisses (jusqu'à  $9.94 \mu\text{m}$ ). D'une part, ceci rend la croissance par épitaxie très longue. D'autre part, il existe une épaisseur critique au-delà de laquelle des dislocations peuvent apparaître à cause des contraintes des désaccords de maille entre couches successives. Nos échantillons ne présentent pas telles dislocations.

Pour la gravure les microcavités "1D", ou fils, un masque est réalisé par lithographie électronique, puis les échantillons sont gravés par gravure ionique réactive.

L'échantillon est finalement clivé le long d'axes cristallins, puis collé sur un porte-échantillon en cuivre à l'aide d'une laque d'argent, le tout assurant le contact thermique et la stabilité mécanique.

## 2.2 Cryogénie

La plupart des échantillons est conçue pour être étudiée à des températures de quelques K. Nous décrivons ici la partie du montage dédiée au maintien des microcavités à cette température.

Le support de l'échantillon est fixé sur un élément appelé "doigt froid" dans lequel circule un flux d'hélium 4 liquide à 4.2 K. Le doigt froid est muni d'un capteur de température pour ajuster le débit d'hélium. La mesure est comparée à une consigne pour contrôler l'ouverture d'un pointeau situé à l'extrémité de la canne de transfert d'où est prélevé l'hélium liquide. L'hélium ayant circulé en contact avec le doigt froid est ensuite envoyé dans un circuit de récupération, pour être de nouveau liquéfié pour une utilisation future.

Le porte-échantillon et le doigt froid sont placés dans un cryostat sous vide (figure 2.1) fabriqué par Oxford Instruments. La pression d'environ  $10^{-6}$  mbar est obtenue à l'aide d'une pompe turbomoléculaire. Le cryostat est muni de fenêtres permettant les mesures optiques sur l'échantillon.

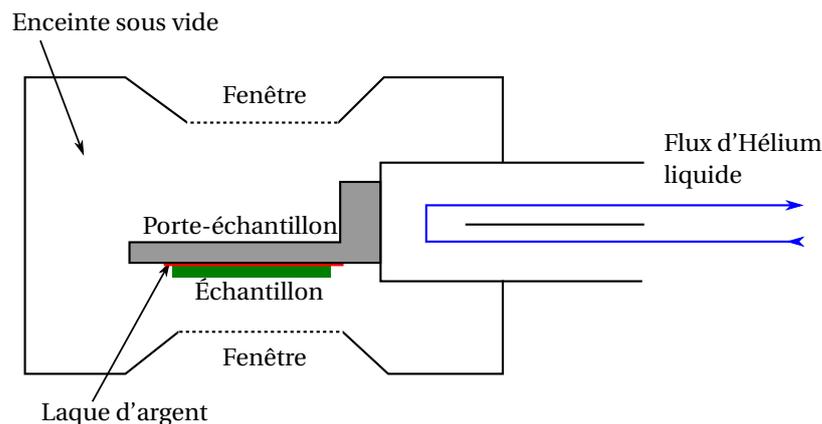


FIGURE 2.1 – Schéma du cryostat à circulation d'hélium dans lequel est fixé l'échantillon

## 2.3 Excitation laser

Le comportement des microcavités s'étudie par injection de porteurs dans la structure. Deux types d'excitation sont possibles, correspondant à l'injection des deux types de porteurs : électrique ou optique. L'excitation électrique vise à injecter des électrons et des trous dans les puits quantiques, par l'application d'une différence de potentiel entre les faces de la microcavité dont les couches ont été spécialement dopées à cet effet. Même si l'injection électrique est le type d'excitation le plus favorable à une utilisation de la microcavité comme dispositif à part entière (comme un VCSEL), elle est aussi moins flexible comparée à l'excitation optique. Cette dernière consiste à injecter plutôt des photons dans la cavité en éclairant une de ses faces par un faisceau laser. Le choix de la longueur d'onde du laser permet de choisir si les photons sont injectés en résonance ou non. Hors résonance, les photons sont injectés à haute énergie (comparativement à l'énergie des polaritons), absorbés, puis relaxent jusqu'à créer les polaritons. Au contraire, en résonance, on injecte directement des photons à l'énergie des polaritons. Nous décrivons ici l'excitation optique de nos échantillons.

### 2.3.1 Production et caractéristiques du faisceau laser

Le faisceau laser d'excitation est produit par un laser COHERENT MIRA, qui est un laser Titane-Saphir accordable du rouge au proche infrarouge. Ce laser à cavité linéaire permet de créer un faisceau continu ou impulsionnel, que nous utiliserons en continu dans les expériences décrites dans cette thèse. Dans cette configuration, la puissance laser accessible est de l'ordre d'1W. Le laser Titane-Saphir est lui-même pompé par un laser COHERENT VERDI émettant en continu à 532 nm, composé d'un système de pompage à diodes laser fibrées, d'un cristal de Nd :YVO4 lasant à 1064 nm, et finalement d'un cristal doubleur de fréquence. L'ajustement de la longueur d'onde du Titane-Saphir de 700 à 1000 nm est réalisé en tournant un cristal biréfringent situé dans la cavité laser.

Comme indiqué dans la partie 1.6.2, les photons sortent de la cavité d'un laser continu idéal à des instants indépendants les uns des autres, et le bruit d'intensité du faisceau est donc rigoureusement un bruit poissonien (aussi appelé bruit de grenaille, ou encore shot noise). Dans un laser réel, différents phénomènes s'ajoutent néanmoins au spectre plat du bruit de grenaille.

Premièrement, on observe un excès de bruit à basses fréquences, en-dessous d'1 MHz. Ce phénomène est associé aux oscillations plasma dans le cristal de Titane-Saphir. Ce bruit basse-fréquence du laser oblige à mener les mesures de bruit d'intensité (décrites dans la partie 2.5) à des fréquences supérieures à 1 MHz.

Deuxièmement, le laser MIRA est conçu comme un bon générateur d'impulsions à spectre large, mais au contraire n'est pas conçu pour être un générateur de faisceaux continus aussi bon qu'un laser *monomode*. Un laser *monomode* est généralement basé sur une cavité en anneau muni d'une succession d'étalons de filtrage. Au contraire, la cavité du laser MIRA n'est pas munie d'étalons, et produit un faisceau *multi-modes* qui est la superposition d'un grand nombre de modes longitudinaux de la cavité. En conséquence, l'intensité du faisceau présente donc des battements caractéristiques de cette superposition à des fréquences supérieures au GHz. Comme on le verra, la bande passante de nos détecteurs n'atteint pas le GHz, les mesures de bruit ne sont donc pas limitées par les oscillations à ces fréquences.

Notons qu'en excitation résonante, du point de vue des modes polaritoniques ou

même photoniques (loin de l'exciton) des microcavités, le laser *multi-modes* n'excite bel-et-bien qu'un seul mode de l'échantillon. En effet, même si la raie laser est composée de multiples raies, elle est tout entière nettement plus fine que la largeur des modes de cavité de nos échantillons.

Enfin, un isolateur optique THORLABS large-bande placé en sortie du laser MIRA permet d'éviter le couplage par réflexion entre le laser et l'échantillon de microcavité. Ce couplage a tendance à forcer le laser à émettre rigoureusement sur la longueur d'onde de résonance de la microcavité, quand celui-ci s'en approche. L'isolateur, par effet Faraday, atténue de 40 dB les ondes réfléchies par la microcavité, et permet ainsi de balayer la longueur d'onde du laser autour des résonances de l'échantillon sans en ressentir l'effet.

### 2.3.2 Optique gaussienne et focalisation

Le laser d'excitation produit un faisceau gaussien qui doit ensuite être focalisé sur l'échantillon de microcavité. Les contraintes sur la focalisation du faisceau laser sont les suivantes :

- Pour atteindre des intensités d'excitation suffisamment grandes, le faisceau doit être suffisamment focalisé. Si ce n'est pas le cas, dans les expériences dans lesquels on n'atteint pas le régime non-linéaire reste une ambiguïté : ce régime est-il complètement inaccessible à toute puissance ou n'a-t-on simplement pas excité le système suffisamment fort ?
- Le cas idéal qui modélise les effets non-linéaires est généralement celui de l'excitation par une onde plane d'extension latérale infinie. En pratique, le spot de diamètre limité introduit donc des effets de taille finie dans les observations qui peuvent réduire notablement l'efficacité des processus non-linéaires. Citons en particulier le phénomène de *walk-off*, qui correspond à la dégradation de la superposition spatiale entre les polaritons pompe, signal, et complémentaire (détaillé dans le chapitre 4). Pour contrer ces effets, la tache d'excitation doit donc être le plus large possible.
- Les échantillons de microcavités *2D* présentent un gradient d'épaisseur qui permet l'ajustement des longueurs d'onde de résonance des cavités. Étant donné ce gradient d'épaisseur d'une part (3.6 meV/mm), et la finesse des cavités d'autre part (jusqu'à  $\gamma_C \approx 0.1$  meV), on détermine une taille de spot maximale au-delà de laquelle il est inutile d'aller, sinon les extrémités du spot seraient de toute façon hors résonance (ici  $\approx 360\mu\text{m}$ ).
- Le cryostat sous vide, muni de sa fenêtre, impose une distance de travail d'environ 1 cm entre l'échantillon et la lentille d'excitation.
- Enfin, contrairement à un montage en transmission où excitation et détection sont découplées, ici le montage en réflexion oblige à choisir des optiques de focalisation qui sont compatibles avec les contraintes de la détection abordées dans la partie 2.4. En particulier, le faisceau réfléchi doit être suffisamment petit dans le plan de Fourier de la dernière lentille de focalisation, plan qui sert à faire l'imagerie angulaire de l'émission. Cette dernière lentille doit aussi avoir une grande ouverture angulaire, pour permettre l'observation des faisceaux émis à grand angle.

**Chemin optique** Compte tenu de ces contraintes, on choisit comme lentille de focalisation un oculaire de télescope WIDE SCAN *Type III*. Cette oculaire de télescope, que l'on utilise ici dans une configuration originale (où il est inversé par rapport à

l'utilisation habituelle dans un télescope) a pour particularités d'avoir une grande ouverture angulaire de  $84^\circ$  et une distance focale de 16 mm, ce qui laisse un confortable distance de travail d'1 cm entre le bord de l'oculaire et le plan focal où sera placé l'échantillon. On amène le faisceau laser jusqu'à cet oculaire par une succession de lentilles qui permettent d'ajuster la position et la taille du waist du faisceau gaussien, qui doit se trouver sur la surface de l'échantillon avec un diamètre proche de  $50 \mu\text{m}$ . La lame séparatrice  $S_1$  permet de laisser passer les faisceaux émis par l'échantillon vers le dispositif de visualisation.

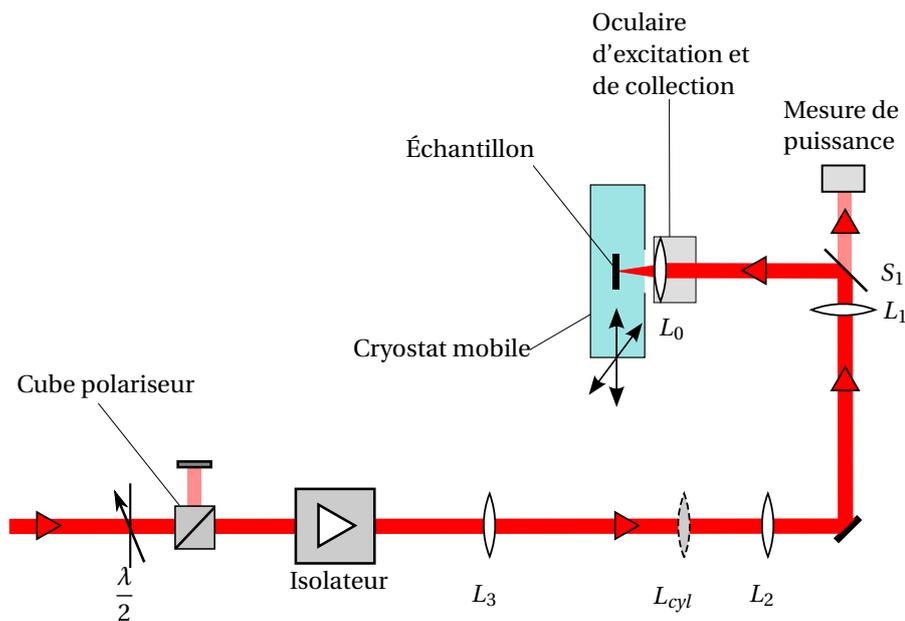


FIGURE 2.2 – Schéma du dispositif optique d'excitation.  $L_{cyl}$  est une lentille cylindrique facultative, que l'on utilise pour rendre le spot très elliptique sur la surface de l'échantillon.  $L_0$  est l'oculaire de télescope utilisé comme ultime lentille de focalisation.

Pour optimiser le placement des lentilles tout en respectant les contraintes expérimentales, j'ai utilisé un programme de simulation de la propagation d'un faisceau gaussien à travers une succession de lentilles appelé *GaussianBeam*<sup>1</sup>.

**Contrôle de la puissance d'excitation** Le réglage de la puissance d'excitation est réalisé à l'aide d'un couple formé par une lame demi-onde et un polariseur. On dispose également d'une densité circulaire ajustable pour atteindre les puissances les plus faibles, quand le couple polarisant se trouve hors de la gamme de longueur d'onde optimale.

La puissance d'excitation est mesurée par un bolomètre COHERENT, placé derrière la lame séparatrice. Moyennant calibration des coefficients de réflexion et de transmission de la lame, ceci permet une mesure permanente et continue de la puissance d'excitation.

1. *GaussianBeam* est un logiciel libre écrit par J. Lodewyck, aujourd'hui chercheur à l'Observatoire de Paris, dans le laboratoire SYRTE. <http://gaussianbeam.sourceforge.net/>

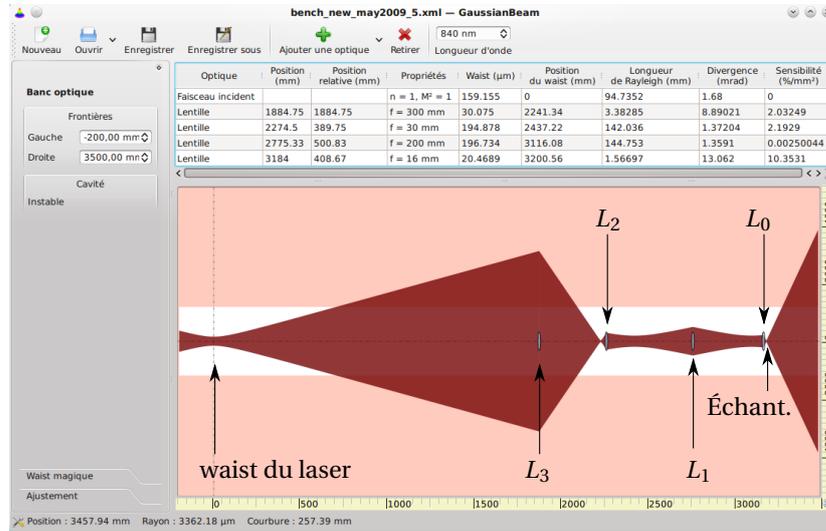


FIGURE 2.3 – Capture d'écran du logiciel GaussianBeam. Les caractéristiques d'émission du laser Ti :Sa servent de point de départ au calcul, sur la gauche du graphe. Les 4 lentilles  $L_0$  à  $L_3$  sont représentées, la lentille d'excitation  $L_0$  étant la dernière sur la droite. L'échantillon est placé précisément au point de focalisation immédiatement à droite de  $L_0$ .

**Contrôle de la polarisation d'excitation** En sortie du laser MIRA, le faisceau est polarisé horizontalement. Après l'isolateur de Faraday, la polarisation est toujours linéaire, mais tournée de  $45^\circ$ . Pour différentes séries de mesures, il est nécessaire de contrôler précisément l'angle de polarisation linéaire du faisceau d'excitation, ou encore d'exciter l'échantillon avec une polarisation circulaire. Pour ceci, on utilise simplement des lames demi-onde ou quart d'onde adaptées aux longueurs d'onde de travail. Notons que changer l'état de polarisation du faisceau modifie aussi les coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission des lames séparatrices traversées, ce qui nécessite de prêter une attention particulière aux mesures de puissances effectuées dans ces conditions. Enfin, les lames séparatrices rendent délicate l'utilisation d'une polarisation linéaire arbitraire ; en pratique le faisceau d'excitation est généralement dans une polarisation légèrement elliptique, dont nous présentons la calibration précise dans l'annexe B. La prise en compte de cette composante elliptique est importante dans l'interprétation des résultats du chapitre 5 où nous étudions le comportement en polarisation du processus de diffusion paramétrique.

**Spot anisotrope** Les microcavités 1D, ou fils photoniques, dont l'étude est détaillée au chapitre 3, nécessitent une excitation particulière. Leur largeur varie de  $3 \mu\text{m}$  à  $7 \mu\text{m}$  et leur longueur atteint 1 mm ; et ils sont gravés perpendiculairement au gradient d'épaisseur de la cavité. Ainsi, il est souhaitable d'exciter chaque fil individuellement par un spot très anisotrope (figure 2.4), ce qui permettra de ne pas perdre de puissance sur les zones gravées, et d'exciter une grande longueur de fil ce qui diminue avantageusement les effets non-linéaires dus à la taille finie du spot.

Pour atteindre cet objectif, on ajoute une lentille cylindrique  $L_{cyl}$  sur le chemin

du faisceau. La lentille cylindrique ne change pas la largeur du spot sur son axe neutre, par contre elle permet de réaliser un spot de quelques micromètres de large sur l'axe actif. On règle l'orientation de la lentille pour que le spot allongé soit aligné suivant l'axe des fils.

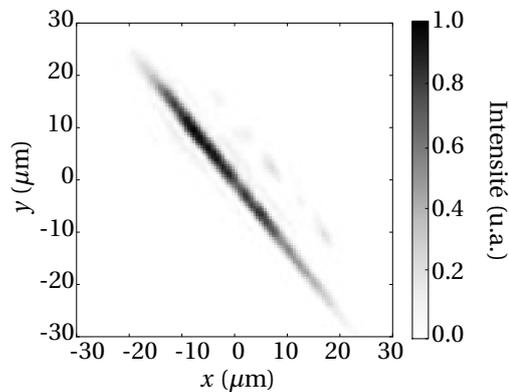


FIGURE 2.4 – Spot d'excitation anisotrope visualisé sur la surface de l'échantillon.

### 2.3.3 Configuration pompe-sonde

Au chapitre 5, nous décrivons une expérience de type pompe-sonde, où deux faisceaux d'excitation sont nécessaires.

**Chemin optique secondaire (Figure 2.5)** Pour obtenir ces deux faisceaux et régler leurs puissances indépendamment, on place un couple lame demi-onde et cube polariseur pour séparer le faisceau laser en deux en répartissant la puissance selon les besoins (parfois équitablement, parfois en privilégiant une forte puissance de pompe). Les deux faisceaux, dont on a éventuellement ajusté la polarisation relative avec une lame d'onde supplémentaire, sont regroupés vers l'échantillon grâce à une lame séparatrice. Notons une fois de plus que cette lame constitue un élément de plus à calibrer pour connaître précisément la puissance injectée, et que la puissance de chaque faisceau varie avec son état de polarisation, ce qui se révèle critique pour interpréter correctement les résultats de mesures.

**Taille des spots et superposition** On choisit de rendre le spot de sonde plus petit que celui de pompe pour faciliter la démarche de superposition, à l'aide d'une lentille supplémentaire dans le chemin du faisceau de sonde. Notons que dans toutes les expériences sur les microcavités, l'angle d'incidence des faisceaux a autant d'importance que la position d'excitation, puisque cet angle définit directement le vecteur d'onde dans le plan des couches des polaritons créés dans la microcavité. Ainsi, dans les expériences pompe-sonde, on s'attache à superposer les spots sur l'échantillon tout en choisissant précisément le bon angle d'incidence pour chaque faisceau.

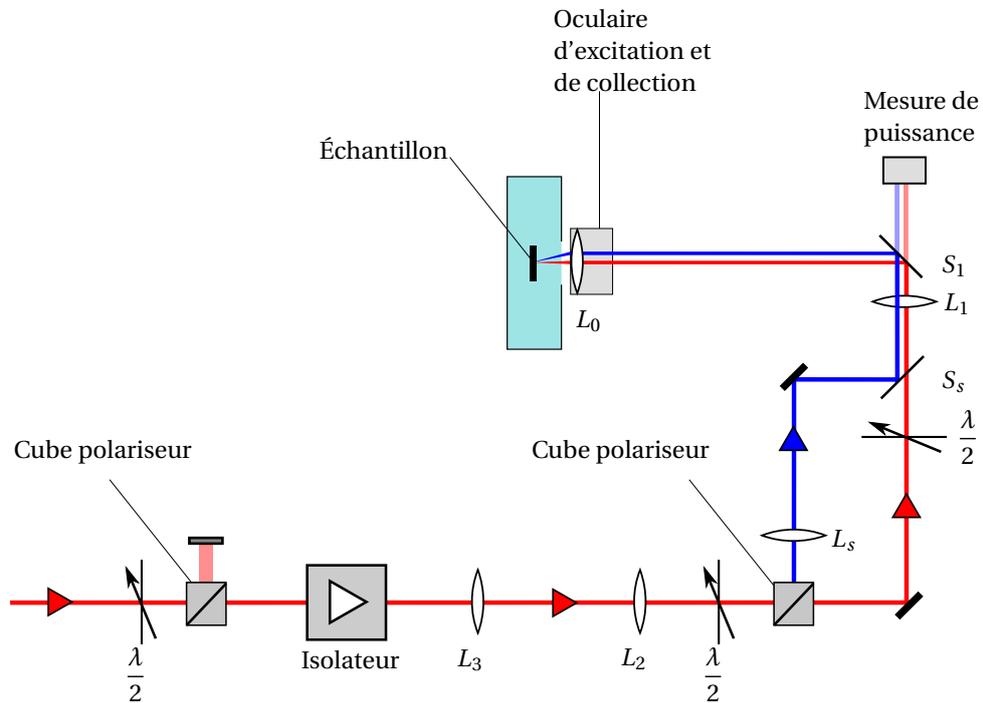


FIGURE 2.5 – Schéma du dispositif d'excitation pompe-sonde

## 2.4 Imagerie de l'émission

### 2.4.1 Imagerie de la surface

Visualiser la surface de l'échantillon permet d'évaluer la taille des spots d'excitation, et d'estimer par exemple leur intensité locale plutôt que la puissance totale. Les images permettent également de contrôler la position des spots, ce qui est critique dans les mesures pompe-sonde, ou encore quand il faut exciter un fil photonique unique. Elles permettent aussi d'avoir une idée de la qualité de surface des échantillons, et de repérer et d'éviter d'éventuels défauts de surface. Enfin, elles permettent d'observer l'état d'uniformité du spot, qui peut changer radicalement en régime non-linéaire où certaines portions sous le spot absorbent plus que d'autres.

On obtient les images grâce à une webcam placée dans un plan image de la surface de l'échantillon. Les faisceaux émis ou réfléchis par l'échantillon sont acheminés vers le capteur à travers une lentille séparatrice et une lentille qui fait l'image de la surface de l'échantillon (sur quelques centaines de microns de large) sur le capteur.

### 2.4.2 Imagerie du plan de Fourier

Le couplage fort entre cavité et puits quantiques se voit nettement dans la dispersion de la photoluminescence d'une microcavité. Pour mesurer cette dispersion, il faut faire une image de l'émission de la cavité résolue en angle ou, de manière équivalente moyennant les calculs géométriques adéquats, résolue en vecteur d'onde dans le plan des couches de l'échantillon. De même, l'émission d'une microcavité

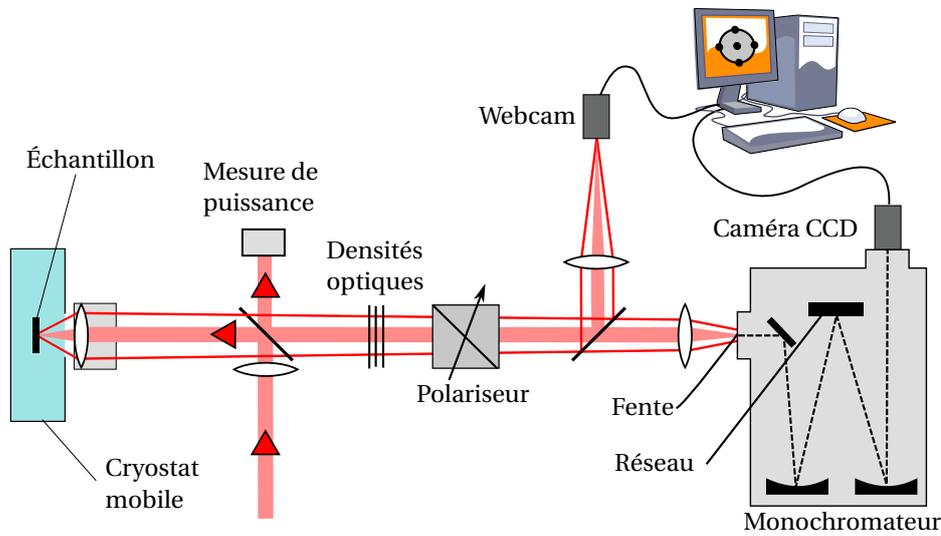


FIGURE 2.6 – Schéma du montage dédié à la visualisation de l'émission

observée en fonction de l'angle permet de vérifier les caractéristiques de conservation du vecteur d'onde que doit respecter le processus non-linéaire qui peut en être à l'origine.

On peut faire une telle image en composant une série de mesures réalisées avec un goniomètre, éventuellement combiné avec un spectromètre pour résoudre l'émission en angle et en longueur d'onde. L'utilisation d'un capteur CCD permet d'acquérir de telles images en une seule mesure, directement, en faisant l'image d'un plan de Fourier sur le capteur en question.

**Définition du plan de Fourier** Le plan focal image d'une lentille est aussi appelé plan de Fourier<sup>2</sup>. Les faisceaux parallèles incidents à la lentille convergent dans ce plan (figure 2.7). Plus précisément, les coordonnées  $(x, y)$  d'un point dans ce plan sont directement liées aux angles d'incidence  $(\theta_x, \theta_y)$  du faisceau par les relations :  $x = f' \tan(\theta_x)$  et  $y = f' \tan(\theta_y)$ . On peut également définir le vecteur d'onde  $k$  du faisceau, dont les coordonnées dans le plan de l'échantillon sont  $(k_x, k_y)$ . Dans ce cas, on a aussi  $k_x = k \sin(\theta_x)$  et  $k_y = k \sin(\theta_y)$ .

En vertu de la loi de Snell-Descartes, l'angle  $\theta_{out}$  avec lequel un faisceau se propage en dehors de l'échantillon est relié à l'angle  $\theta_{in}$  à l'intérieur de la microcavité par la relation :  $n \sin(\theta_{in}) = \sin(\theta_{out})$  où  $n$  est l'indice optique de la cavité (par exemple, 3.54 pour la cavité en GaAs à une température de 4K). De même, les vecteurs d'onde à l'extérieur et à l'intérieur de l'échantillon sont liés.

En plaçant le capteur CCD dans ce plan de Fourier ou dans un plan conjugué à ce dernier, on fait donc l'image en vecteur d'onde de l'émission. Moyennant une calibration préalable, on peut graduer précisément les axes de l'image avec les angles de l'émission ou ses vecteurs d'onde, externes ou internes à la cavité. L'annexe C

2. En vertu du principe de Huygens-Fresnel et dans le cadre de l'approximation de Fraunhofer, un objet éclairé par une onde plane verra sa transformée de Fourier se former à l'infini, ou dans le plan focal image de n'importe quelle lentille placée après cet objet. D'où le nom de "plan de Fourier" donnée au plan focal image d'une lentille.

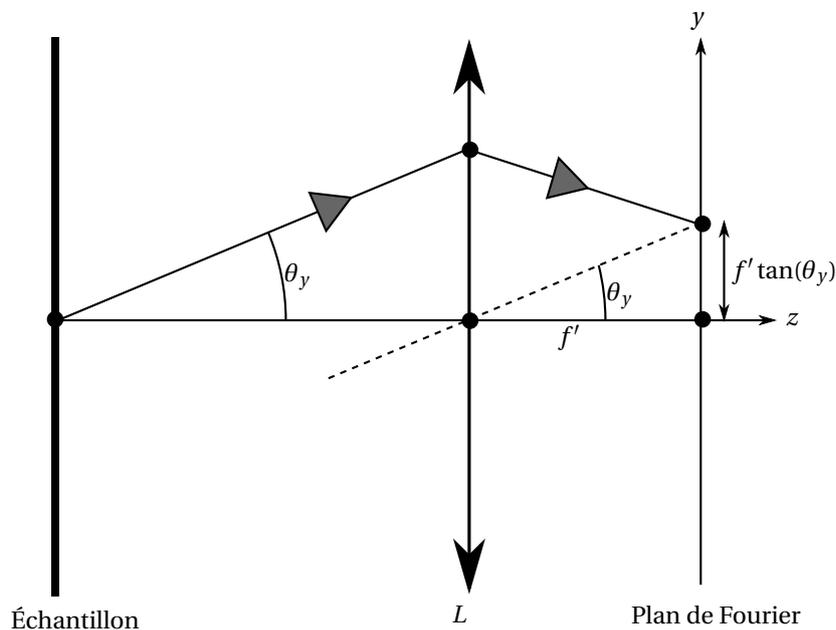


FIGURE 2.7 – Schéma en coupe dans le plan  $(y, z)$  de la géométrie associée au plan de Fourier

indique précisément comment on calibre les angles dans le plan de Fourier en se basant sur les dispersions de cavité.

**Chemin optique** En pratique, une lentille fait l'image du plan de Fourier de l'oculaire d'excitation sur la fente du spectromètre, puis par construction le spectromètre conjugue le plan de cette fente avec le plan d'un capteur CCD (figure 2.6). Comme pour l'image de la surface, les faisceaux peuvent être filtrés par des densités optiques et un polariseur.

**Limitations imposées par l'optique gaussienne** La taille des points dans le plan de Fourier est liée géométriquement à la largeur angulaire des faisceaux qui sortent de l'échantillon. Plus précisément, les faisceaux en question sont vraisemblablement des faisceaux gaussiens (comme le faisceau d'excitation), et répondent donc aux lois de l'optique gaussienne. En particulier, des faisceaux très convergents sur l'échantillon, c'est-à-dire dont le waist est petit, auront aussi une section très grande dans le plan de Fourier. Ceci justifie que les images du plan de Fourier présentées dans cette thèse soient composées de taches larges.

**Capteur** Pour l'acquisition des images, nous utilisons un capteur CCD Silicium monochrome placé dans une enceinte sous vide et est monté sur un élément Peltier qui le maintient à  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  pour réduire le bruit de fond d'origine thermique. Le capteur et son contrôleur<sup>3</sup> sont conçus pour des temps d'exposition variables allant de

3. L'électronique et le logiciel de contrôle du capteur CCD ont été conçus par David Daron à l'atelier d'électronique du Laboratoire Pierre Aigrain.

300  $\mu$ s jusqu'à plusieurs dizaines de minutes. De plus, le convertisseur analogique-numérique associé échantillonne les intensités sur 13 bits, et permet d'appliquer un gain numérique allant de 0 à 100 dB. L'ensemble permet une très grande dynamique d'acquisition.

### 2.4.3 Spectromètre

Le capteur CCD est placé dans le plan image d'un spectromètre à réseau, ceci permet d'enregistrer le spectre de l'émission, et même d'enregistrer des images où un axe correspond aux énergies, et l'autre aux angles d'émission, ce qui donne une vision directe des caractéristiques de l'émission de la microcavité.

**Caractéristiques du réseau** Le spectromètre ACTON SPECTRAPRO 2500i est un spectromètre de 50 cm de distance focale, équipé d'un réseau de 1200 traits/mm. Réglé sur l'ordre 0, le réseau se comporte comme un miroir, et sur le capteur CCD on observe alors l'image de la fente. En plaçant ainsi le réseau sur l'ordre 0 avec la fente complètement ouverte, on fait une image en deux dimensions du plan de Fourier de la lentille d'excitation comme on l'a décrit dans la section précédente. En revanche, en fermant la fente et en réglant le réseau sur une longueur d'onde d'observation non nulle, on obtient une image dont un axe correspond aux énergies, tandis que l'autre axe correspond aux angles d'émission. Nous présentons ces deux modes de fonctionnement sur la figure 2.8.

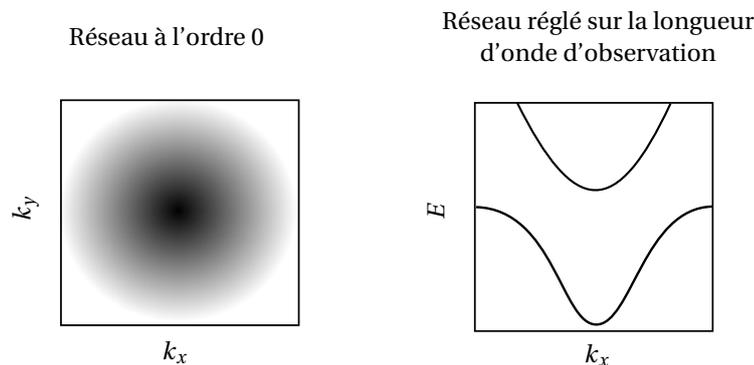


FIGURE 2.8 – Visualisation du plan de Fourier ou de la dispersion en changeant le réglage du réseau du spectromètre. En réglant le réseau sur l'ordre 0 (figure de gauche), on visualise l'image du plan de Fourier de coordonnées  $(k_x, k_y)$ . En réglant le réseau sur la longueur d'onde d'observation (figure de droite), on visualise la dispersion  $(E, k_x)$ .

**Réponse en polarisation** Notons que le réseau du spectromètre est un élément particulièrement anisotrope ; ceci entraîne que la réponse en intensité dépend largement de la polarisation, et devra être calibrée. Cette réponse en polarisation est très importante dans l'étude réalisée au chapitre 5. Les deux lames séparatrices traversées par les faisceaux émis par l'échantillon ont aussi une réponse non triviale en polarisation. Pour caractériser le tout, on modélise de manière simple le spectromètre et les lames séparatrices comme un élément à deux canaux de polarisations

ayant une réponse en intensité différente. Ainsi l'intensité d'un faisceau polarisé linéairement avec un angle  $\theta$  sera affecté d'un facteur  $\cos(\theta - \theta_0)^2 + a \sin(\theta - \theta_0)^2$ , où  $a$  est le rapport entre les intensités des deux canaux, et  $\theta_0$  décrit essentiellement l'angle que font les fils du réseau avec l'angle nul de référence. La calibration de la réponse du spectromètre consiste à mesurer précisément  $a$  et  $\theta_0$ . La figure 2.9 illustre une telle mesure de calibration.

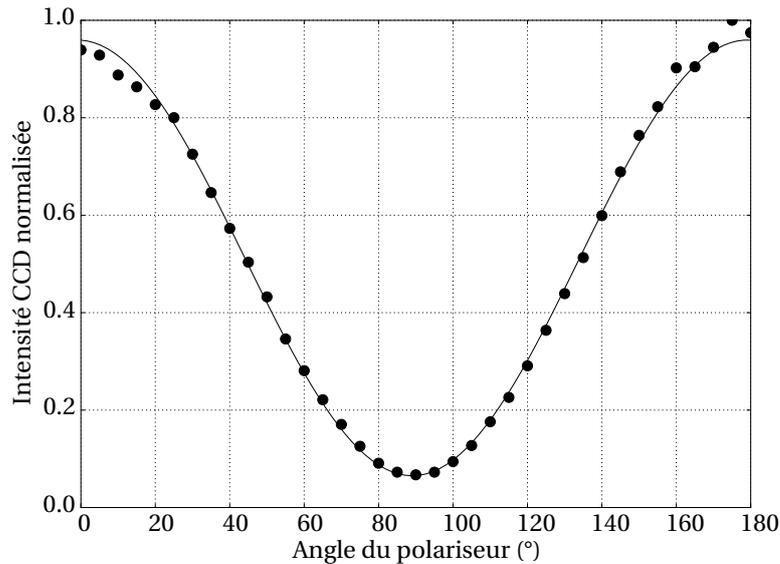


FIGURE 2.9 – Graphe de calibration de la réponse en polarisation du spectromètre et des éléments optiques qui le précèdent.

## 2.5 Mesure temporelle de l'intensité de l'émission, bruit

Si les images acquises avec les capteurs CCD renseignent sur les caractéristiques statiques de l'émission des microcavités, essentielles à la compréhension des processus linéaires et non-linéaires sous-jacents, elles correspondent toujours à des temps d'acquisition longs, et n'apportent pas d'information sur la dynamique et sur les propriétés temporelles de l'émission. Ces propriétés sont de grandes sources d'information sur les processus non-linéaires comme nous l'avons vu dans la partie 1.6.6. En particulier, mesurer les fluctuations de l'intensité d'un faisceau ou les corrélations entre les intensités de plusieurs faisceaux est un puissant moyen d'investigation. De plus, ces corrélations, si elles sont suffisamment fortes, sont à l'origine de nombreuses applications. Nous détaillerons donc ici comment nous avons étudié les propriétés temporelles des faisceaux émis par les microcavités.

### 2.5.1 Extraction des faisceaux, filtrage spatial dans un deuxième plan de Fourier

La première étape consiste à séparer optiquement les faisceaux à étudier. Les structures étudiées dans cette thèse ont été conçues pour que les faisceaux émis par l'oscillation paramétrique soient spatialement séparés (par opposition au processus "vertical" où les faisceaux sont séparés en énergie mais pas forcément spatialement). Il s'agit donc de filtrer spatialement et d'extraire ces faisceaux depuis le plan de Fourier.

Pour optimiser la qualité des mesures de corrélations, il est important de limiter les pertes et donc de limiter le nombre d'optiques traversées par les faisceaux. On choisira donc d'extraire les faisceaux à étudier à l'aide de deux miroirs placés juste après l'oculaire d'excitation, à proximité du plan de Fourier (qui, rigoureusement, est inaccessible car situé à l'intérieur de la monture de l'oculaire). Il est nécessaire ensuite de filtrer précisément tous les faisceaux indésirables, on réalise donc un deuxième plan de Fourier pour chaque faisceau avec une lentille, avec un léger grandissement. Dans ces plans de Fourier, on filtre avec un diaphragme (ou une fente pour les fils dont l'émission est allongée dans le plan de Fourier). Les faisceaux ainsi "nettoyés" sont finalement focalisés sur la surface active des photodétecteurs.

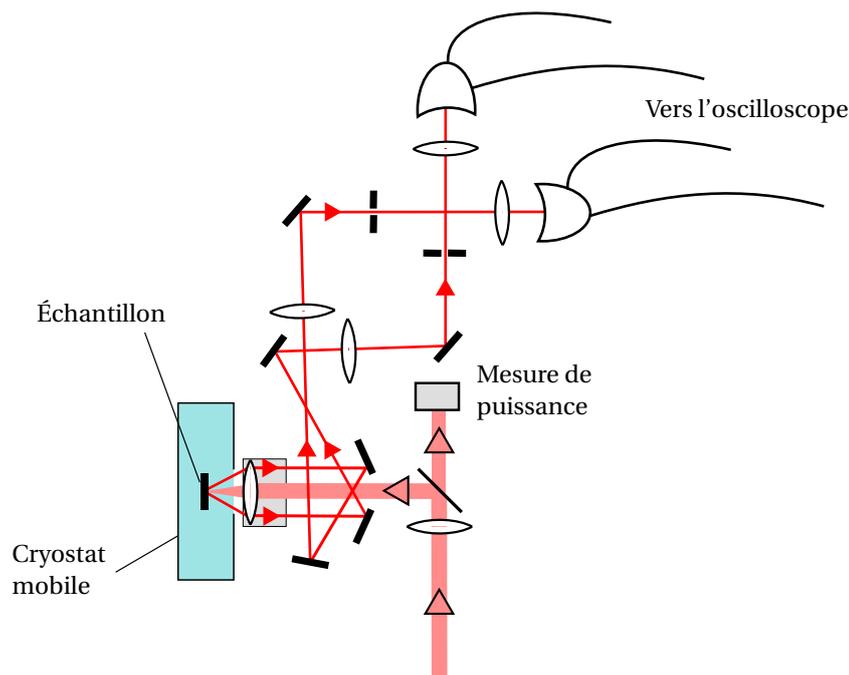


FIGURE 2.10 – Schéma réaliste du dispositif d'extraction et de filtrage des faisceaux à mesurer.

### 2.5.2 Photodiodes

Le cahier des charges des détecteurs dont nous avons besoin est le suivant : le détecteur doit idéalement être sensible sur une large gamme de puissances, allant de

10 nW à 100  $\mu$ W environ, correspondant aux puissances mesurées en sortie de notre échantillon ; le détecteur doit être rapide, au sens où les fluctuations jusqu'à environ 10 MHz doivent être mesurables ; le rendement quantique aux longueurs d'onde de travail doit être le plus proche possible de 1, toute diminution correspondant à des pertes qui dégradent la mesure de corrélations entre les faisceaux ; deux photodétecteurs doivent avoir une réponse la plus proche possible l'une de l'autre, les déséquilibres étant également une importante source de dégradation des corrélations ; enfin, la mesure des fluctuations doit être la plus fidèle possible, un détecteur doit donc ajouter un bruit négligeable devant le bruit de photons que nous mesurerons.

**Caractéristiques statiques** Les photodétecteurs choisis sont des photodiodes Silicium Hamamatsu S5971. D'après le constructeur, leur réponse maximale en intensité est atteinte sous une longueur d'onde de 900 nm et vaut  $\eta = 0.64$  A/W, ce qui correspond à un rendement quantique de 88 %. Nous avons mesuré celui-ci sur un couple de deux photodiodes comme étant respectivement de  $90 \pm 2$  % et  $89 \pm 2$  % à une longueur d'onde de 910 nm.

**Caractéristiques de bruit** Le courant noir de la photodiode est annoncé à 70 pA pour une polarisation inverse de 10 V. Ce courant noir crée directement un bruit qui s'ajoutera au bruit du faisceau lumineux à mesurer, mais il ne correspond qu'au bruit d'un faisceau lumineux de 109 pW au shot noise, ce qui est tout à fait négligeable comparé aux sources de bruit électronique que nous considérerons plus loin.

**Réponse en fréquence** Le temps de réponse d'une photodiode [1, 2] est schématiquement décomposé en trois termes : le temps de transit dans la zone de déplétion de la photodiode, le temps de transit dans les zones neutres de la photodiode, et la constante de temps formée par la capacité de la photodiode et de la résistance de charge du montage.

La surface de la zone active des photodiodes S5971 est réduite, elle ne fait qu'1 mm<sup>2</sup> (en contrepartie ceci impose un effort de focalisation sur cette petite surface). De plus, ces photodiodes sont de type "PIN", c'est-à-dire qu'une couche isolante est ajoutée entre les zones dopées P et N de la photodiode, ce qui épaissit la zone de déplétion. Par construction, grâce à sa petite surface et à sa grande épaisseur, la zone de déplétion a une capacité faible. Sous polarisation inverse, la zone de déplétion est encore agrandie. Par exemple, d'après le constructeur, la capacité est diminuée d'un facteur 2 en passant la polarisation d'une photodiode de 1 V à 10 V.

Par ailleurs, le champ électrique de la polarisation inverse s'ajoute au champ intrinsèque dans la jonction. Ainsi les porteurs photocréés sont rapidement accélérés, ce qui diminue leur temps de transit qui est un autre des trois temps caractéristiques.

Au final, la fréquence de coupure des photodiodes S5971 sous une polarisation inverse de 10 V est estimée par le constructeur à 100 MHz. Leur capacité équivalente, qui détermine la bande passante d'un montage où la photodiode serait montée sur une résistance de charge, est estimée à 3 pF.

**Comparaison avec autres détecteurs** D'autres détecteurs comme les photodiodes à avalanche, les photomultiplicateurs ou les phototransistors présentent l'avantage d'amplifier le signal mesuré.

Pour la photodiode à avalanche [3, 4], ce gain vient directement du processus de détection, qui multiplie les porteurs avant de les mesurer à proprement parler. Ce gain est intéressant pour les mesures des valeurs moyennes, et permet même la réalisation de détecteurs de photon unique. L'étape d'amplification amplifie le signal, mais rajoute aussi un terme multiplicatif d'excès de bruit qui est catastrophique pour nos mesures de fluctuations. Le bruit du courant photocréé est finalement  $i_{APD} = \sqrt{2eMF\bar{I}}$ , où  $M$  est le gain avalanche, et  $F$  le facteur d'excès de bruit.

Dans une photodiode à avalanche au Silicium opérée avec un gain  $M = 100$ , l'excès de bruit  $F$  est typiquement compris entre 10 et 100. La puissance de bruit est donc de 10 à 100 fois plus grande qu'elle devrait être, et ce bruit étant parfaitement décorrélé entre deux photodiodes, il empêche de réaliser toute mesure de corrélations entre faisceaux.

Les tubes photomultiplicateurs [1] souffrent a priori du même effet d'excès de bruit multiplicatif, et ils ont également un rendement quantique faible, voisin au mieux de 30 %, ce qui est tout à fait disqualifiant.

Enfin, les phototransistors combinent dans le même composant une photodiode et un premier étage d'amplification, qui est situé au plus près du capteur. Malheureusement les phototransistors semblent invariablement conçus avec des bandes passantes bien trop faibles pour nos besoins.

Comparativement à ces trois types de détecteurs, la photodiode PIN "standard" est donc le meilleur choix pour les mesures de corrélations que nous menons.<sup>4</sup>

### 2.5.3 Amplification du photocourant

La photodiode polarisée génère un courant électrique proportionnel au flux de photons qu'elle absorbe. Ce courant doit ensuite être amplifié pour atteindre des niveaux mesurables par les appareils de laboratoire. Nous avons montré dans la partie précédente que les photodiodes PIN sont satisfaisantes pour mesurer le bruit de nos faisceaux. Reste donc à s'assurer que le montage d'amplification a aussi une réponse appropriée. On s'intéressera ici particulièrement aux caractéristiques de réponse en fréquence et de bruit du circuit choisi. Dans cette thèse, nous avons étudié et mis au point un circuit d'amplification bas-bruit adapté à nos besoins. Nous décrivons ci-dessous la démarche que nous avons suivie.

#### Modèle de composants réels, sources de bruit

Pour rendre compte des caractéristiques de la photodiode dans un circuit électronique, on considère un circuit équivalent simple, qui est constitué d'une source de (photo)courant, d'une source de courant noir, et d'une capacité en parallèle.

4. Notons qu'il existe une technique de mesure permettant d'améliorer le rapport signal/bruit de plusieurs ordres de grandeur. Il s'agit de la détection cohérente [1], qui consiste à mélanger le faisceau à mesurer (faisceau "signal") avec un deuxième faisceau appelé oscillateur local. La détection est dite homodyne si l'oscillateur local est à la même longueur d'onde que le faisceau signal, ou hétérodyne dans le cas contraire. La détection homodyne est typiquement utilisée pour mesurer les fluctuations de l'amplitude d'un champ sur différentes quadratures. Dans le contexte présent, elle a surtout la remarquable propriété de donner l'exacte mesure des fluctuations du faisceau signal, multipliées par le rapport de l'intensité de l'oscillateur local sur l'intensité du faisceau signal. L'oscillateur local peut être de l'ordre du mW, si bien que même pour un faisceau signal d'1 nW ou encore moins, la problématique du bruit de détection disparaît! On pourrait imaginer dans notre cas une double détection cohérente. La contrepartie résiderait alors essentiellement dans la complexité du montage optique, qui doit réaliser un alignement parfait des faisceaux, dans le même état de focalisation et de polarisation.

De même, une résistance réelle crée du bruit thermique, elle est donc équivalente à une résistance idéale sans bruit, en parallèle avec une source de bruit de courant dont la densité spectrale est  $i = \sqrt{4kT}/R$ .

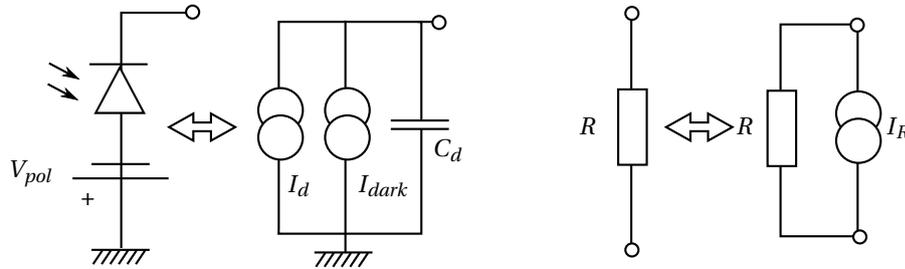


FIGURE 2.11 – Schéma du circuit équivalent à une photodiode réelle

### Amplification avec une simple résistance de charge

Le montage le plus direct est l'utilisation d'une résistance de charge (figure 2.12). On mesure alors la tension aux bornes de la résistance, proportionnelle à l'intensité lumineuse  $V = RI = R\eta I_l$ . La fréquence de coupure à -3 dB du montage est donnée par  $f_c = f_{RC} = 1/(2\pi RC)$ . La résistance introduit un bruit en courant donné par  $i = \sqrt{4kT}/R$ . Supposons qu'on souhaite une bande passante de 10 MHz. Il faut donc utiliser une résistance de 5 k $\Omega$  environ. Le bruit en courant de cette résistance vaut alors 1.8 pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ , ce qui correspond au bruit d'une faisceau au shot noise de 15  $\mu\text{W}$ , ce qui n'est pas satisfaisant. On souhaite en effet pouvoir mesurer le bruit des faisceaux générés par l'oscillation paramétrique au plus près du seuil, où ils font quelques  $\mu\text{W}$  tout au plus. Augmenter  $R$  pour réduire le bruit de la résistance aurait pour effet de réduire la bande passante, ce qui n'est pas souhaitable non plus. Il est donc clair qu'on ne peut satisfaire le cahier des charges des mesures de fluctuations avec ce montage simple.

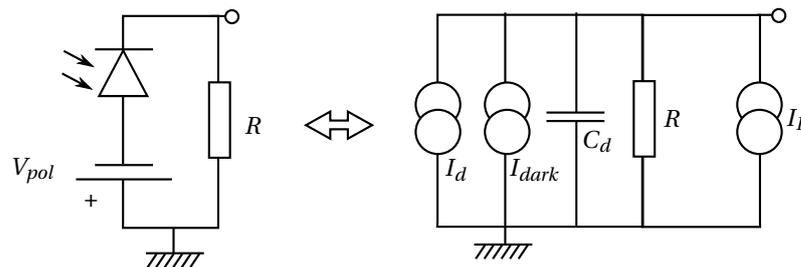


FIGURE 2.12 – Mesure du courant photoinduit par une résistance de charge

### Amplificateur opérationnel en transimpédance

Pour augmenter dramatiquement la bande passante, on utilise un amplificateur opérationnel monté en *transimpédance* [1] (figure 2.13).

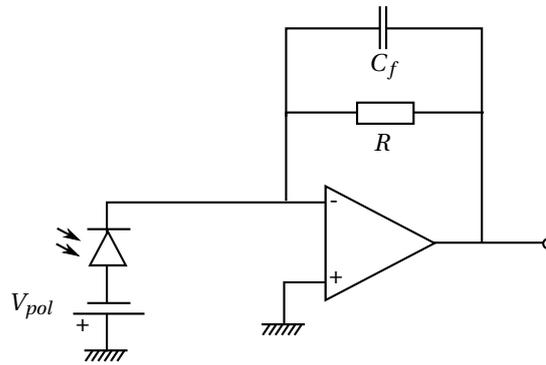


FIGURE 2.13 – Circuit d'amplification transimpédance

Dans ce montage, l'amplificateur idéal, de gain infini, a pour effet de maintenir son entrée inverseuse à une tension constante, nulle. Ainsi, du point de vue de la photodiode, la résistance de charge paraît nulle, et la bande passante du circuit devient infinie.

En pratique, l'amplificateur réel a un gain fini, et la bande passante n'atteint pas l'infini. De plus, il rajoute aussi deux sources de bruit dans le circuit [5], une source de bruit en courant  $i_N$  et une source de bruit en tension  $e_N$  à l'une de ses bornes d'entrée. Vérifions si le résultat final reste satisfaisant. Un amplificateur est caractérisé par son produit gain-bande passante, noté  $f_T$ . De plus, il possède une capacité propre  $C_{in}$  qui s'ajoute à la capacité de la photodiode  $C_d$ . On peut montrer que la fréquence de coupure du montage en transimpédance s'exprime alors :

$$f_c \approx 0.5 \sqrt{f_{RC} f_T}$$

Nous avons utilisé un amplificateur TEXAS INSTRUMENTS OPA 657 qui a un grand produit gain-bande passante de 1.6 GHz, et une faible capacité d'entrée de 0.7 pF. Ainsi, pour atteindre une bande passante de 10 MHz, le calcul indique qu'il suffit alors d'une résistance de 172 kOhms. Le bruit thermique provenant de la résistance vaut alors  $0.31 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ , et est donc notablement réduit par rapport au cas précédent. L'OPA 657 ajoute les bruits  $i_N = 0.0013 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ , qui est clairement négligeable, et  $e_N = 4.8 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ . Le bruit en tension crée un bruit en courant aux bornes de la résistance qui vaut  $\frac{e_N}{R} = 0.028 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ , lui aussi négligeable. Enfin, ce bruit en tension crée un dernier bruit en courant proportionnel à la fréquence  $f$  d'analyse, et vaut  $2\pi e_N C f$ . À une fréquence  $f$  de 10 MHz, ce bruit vaut  $1.1 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ , ce qui domine toutes les autres sources de bruit. À une fréquence de  $f$  de 3 MHz, ce bruit est égal au bruit thermique de la résistance. En combinant toutes les sources, le bruit du montage en transimpédance s'écrit :

$$\sqrt{i_N^2 + \frac{4kT}{R} + \left(\frac{e_N}{R}\right)^2 + (2\pi e_N C f)^2}$$

Il équivaut au bruit d'un faisceau au shot noise de  $0.47 \mu\text{W}$  à la limite des basses fréquences, de  $1.02 \mu\text{W}$  à 3 MHz, et enfin de  $6.5 \mu\text{W}$  à 10 MHz.

En conclusion, avec le montage transimpédance on fait 15 fois mieux (à 3 MHz) en termes de bruit qu'avec une seule résistance de charge.

Dans le contexte de cette thèse où nous mesurons les puissances de bruit, il suffira d'une calibration précise pour retirer la contribution de l'amplificateur et obtenir une estimation satisfaisante du bruit et des corrélations entre les intensités lumineuses<sup>5</sup>.

### Chaînes dédiées basses et hautes fréquences

L'étude de l'intensité du faisceau demande de connaître précisément à la fois la valeur moyenne de l'intensité (ou en tout cas son évolution à basse fréquence) et ses fluctuations à haute fréquence. Pour un faisceau de photons continu à la limite quantique standard, il y a plusieurs ordres de grandeurs entre ces deux entités. Par exemple, pour un courant d'1 mA, l'écart-type des fluctuations dans une bande passante d'1 MHz (typique de ce que nous serons capable d'atteindre) est de 0.02 mA. Il est difficile de réaliser un amplificateur qui ait à la fois la bande passante suffisamment grande, le niveau de bruit suffisamment faible et la saturation suffisamment élevée pour permettre la mesure simultanée de la composantes basses fréquences et des fluctuations hautes fréquences. Pour relâcher une de ces contraintes, on sépare les composantes basses et hautes fréquences en deux voies séparées. La voie hautes fréquences pourra donc avoir un grand gain sans saturer du fait de la composante continue.

### Montage final

En pratique, on a donc deux chaînes d'amplification comme décrit plus haut. On rajoute un deuxième élément d'amplification de tension sur le canal haute fréquence pour élever le niveau de signal qui est encore faible comparativement aux bruits des appareils de mesure (oscilloscope ou analyseur de spectre). Le canal basses fréquences est composé d'un filtre passe-bas suivi d'un étage d'amplification non-inverseur d'un gain voisin de 5. la figure 2.14 représente le circuit final que nous avons mis au point.

### Alternatives

Pour atteindre un niveau de bruit encore plus faible, des techniques alternatives ou complémentaires sont possibles.

Le montage en transimpédance peut être amélioré par l'utilisation d'un transistor d'entrée en montage *cascode* et/ou *bootstrap*. Nous ne détaillerons pas ces techniques, dont l'étude en termes de bruit et de bande passante reprend les mêmes concepts que ceux qui ont été utilisés plus haut.

Alternativement, il est possible d'utiliser des étages de transformateurs pour réaliser l'amplification [6]. Les transformateurs auront pour effet de multiplier le courant par leur rapport de transformation, tout en divisant l'impédance du point de vue des étages suivants.

---

5. Pour les puissances en dessous de 10 mW, ce résultat reste insuffisant pour réaliser un détecteur qui servirait à exploiter les éventuelles corrélations quantiques pour des mesures ultra-précises ou pour de la cryptographie, puisque le bruit de l'amplificateur dominerait alors le bruit de la mesure. On pourrait alors recourir à un montage de détection homodyne (voir la note 4 en page 83).

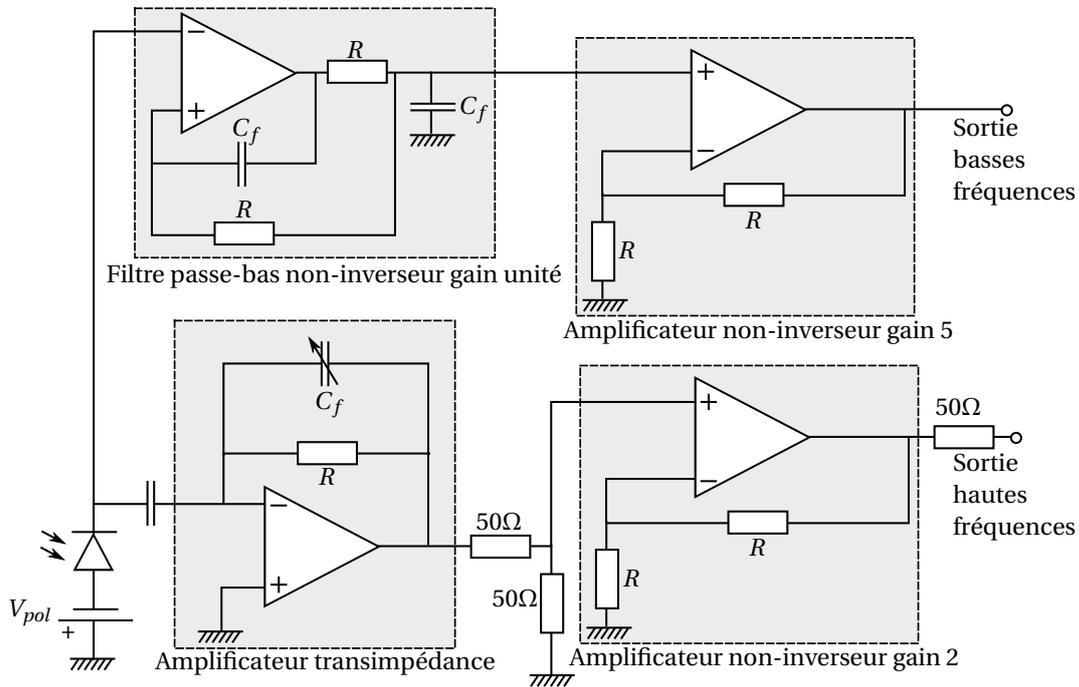


FIGURE 2.14 – Schéma de principe du circuit électronique d'amplification final.

#### 2.5.4 Mesure du bruit haute fréquence

Notre objectif est d'analyser la composante haute fréquence du signal dans une bande de fréquences choisie pour optimiser le rapport signal/bruit, et d'en calculer l'amplitude. Pour les mesures de corrélations entre deux faisceaux, il faut par ailleurs faire les opérations mathématiques d'addition et de soustraction entre les signaux. Chacune des deux étapes, l'analyse spectrale et l'addition/soustraction, peuvent être réalisées électroniquement ou numériquement.

Nous décrivons ci-dessous les trois variantes de montage d'acquisition que nous avons utilisées au cours de cette thèse (figure 2.15).

**Soustracteurs et analyseur de spectre** “Historiquement”, nous avons utilisé tout d'abord une solution basée sur une série de trois soustracteurs hautes fréquences Mini-Circuits et un amplificateur de tension FEMTO HVA-10M-60-B (bande passante 10 MHz, bas bruit - 0.9 nV/sqrtHz, gain de 40 ou 60 dB), branché sur un analyseur de spectre AGILENT ESA E4401B (bande passante 1.5 GHz). Les composantes continues des photodiodes sont mesurées avec des multimètres usuels. On bénéficie de la grande qualité de mesure de l'analyseur de spectre. En revanche, l'analyseur n'a qu'une entrée, donc pour passer de la mesure de la somme à la mesure de la différence il faut débrancher un câble et en rebrancher un autre, ce qui n'est pas pratique pour des longues séries de mesures. Par ailleurs, les multimètres ne donnent pas d'information sur les variations basses fréquences du signal.

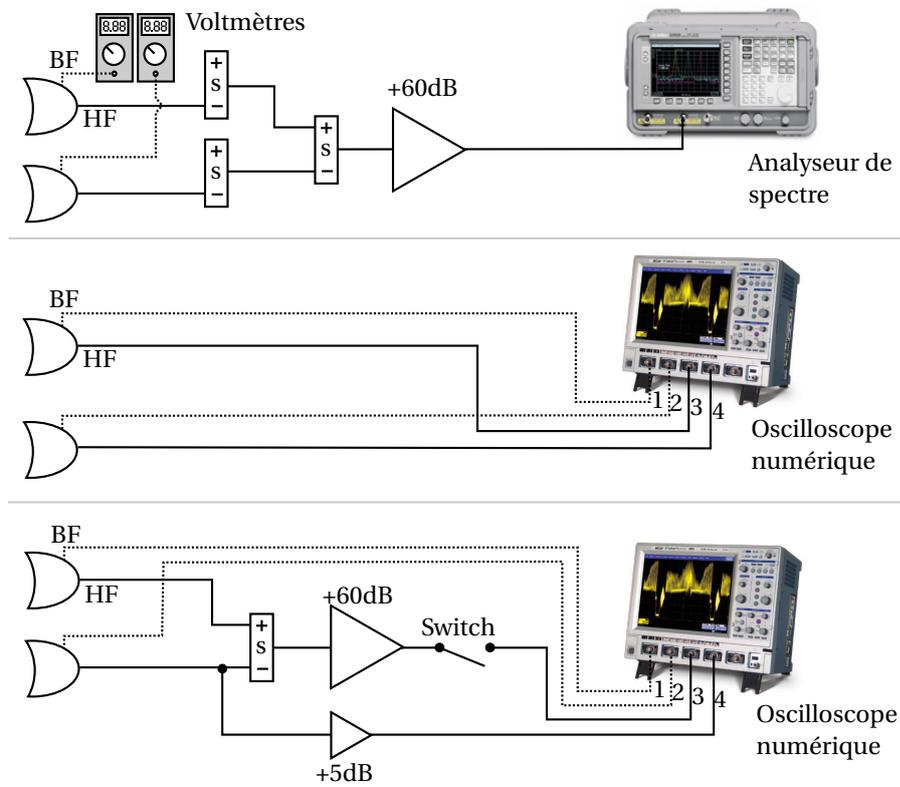


FIGURE 2.15 – Schémas des trois différents montages utilisés pour l'analyse HF

**Oscilloscope** Nous avons par la suite utilisé un oscilloscope quatre voies, permettant l'acquisition et la numérisation simultanée des composantes basses fréquences et hautes fréquences des deux photodiodes. Avec ce montage, il n'y a pas de branchement à changer pour passer de la mesure de la somme à la différence puisque les signaux sont enregistrés indépendamment et l'opération est réalisée numériquement. L'acquisition des voies basses fréquences est aussi très utile pour observer le comportement de l'émission, en particulier sa stabilité. Ce montage permet également d'équilibrer numériquement les signaux des deux voies. En revanche, il nous manque un amplificateur FEMTO pour équiper les deux voies HF, celles-ci sont donc non-amplifiées et subissent un léger excès de bruit du à l'oscilloscope lui-même. En situation de fort bruit sur les faisceaux individuels, notamment dans le contexte du chapitre 3 sur les fils photoniques, les fuites de canal à canal dans l'oscilloscope (dont l'isolation est estimée à 40 dB) peuvent aussi être une limite sur le bruit de la différence.

**Soustracteur, buffer et oscilloscope** Pour aller au-delà de cette limite de 40 dB d'isolation, nous avons finalement utilisé une solution intermédiaire, où la soustraction est réalisée électriquement, mais l'acquisition toujours obtenue avec l'oscilloscope. Pour mesurer les fluctuations de la somme des intensités, on utilise un amplificateur de très haute impédance sur la sortie d'une des photodiodes (TEXAS INSTRUMENTS OPA656, impédance d'entrée de  $10^{12}\Omega$ ). La grande impédance d'en-

trée de cet amplificateur ne perturbe pas le signal qu'il mesure, la différence est donc inchangée. Un switch contrôlé par ordinateur (ANALOG DEVICES ADG431) déconnecte la différence pour réaliser correctement la mesure de la somme (qui peut être perturbée par la différence, amplifiée de 60 dB, mais isolée seulement de 40 dB). Dans cette configuration, on a toujours la mesure simultanée des composantes hautes fréquences et basses fréquences, et aucun branchement à faire pour passer de somme à différence.

### Calibration et spectres de bruit typiques

Dans les figures 2.16 et 2.17 sont reproduits les spectres de bruit typiques obtenus avec les différentes configurations de l'expérience. On notera en particulier la bande passante d'une vingtaine de MHz, et le bruit en excès sur le laser en-dessous d'1 MHz.

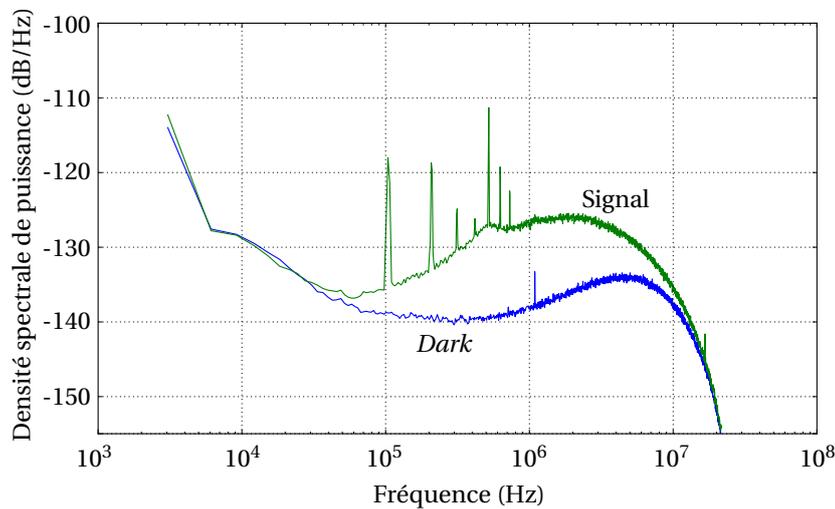


FIGURE 2.16 – Spectre de bruit d'une photodiode éclairée par un faisceau laser de 68  $\mu\text{W}$  à 775 nm, et spectre de bruit d'obscurité.

Pour calibrer le montage (figure 2.18), on réalise d'abord une mesure du bruit d'obscurité, ou "dark", quand aucun faisceau n'est incident sur les photodiodes. Le décalage du zéro des voies basses fréquences est enregistré, ainsi que le bruit de fond des voies hautes fréquences.

Ensuite, on réalise la mesure du shot noise sur toute la gamme de puissance jusqu'à saturation des photodiodes (figure 2.19). Pour cette mesure, le faisceau laser est fortement atténué, puis séparé en deux par un cube polariseur précédé d'une lame demi-onde. Chacun des deux faisceaux est focalisé sur une photodiode. Dans cette mesure, la puissance de bruit sur la différence des intensités donne directement le shot noise, qui est proportionnelle à l'intensité moyenne du faisceau. Si le laser est au shot noise, alors la puissance de bruit de la somme des intensités est égale à la puissance de bruit de la différence, et est aussi proportionnelle à l'intensité moyenne. La calibration du "shot noise" consiste en l'évaluation précise de cette relation de proportionnalité.

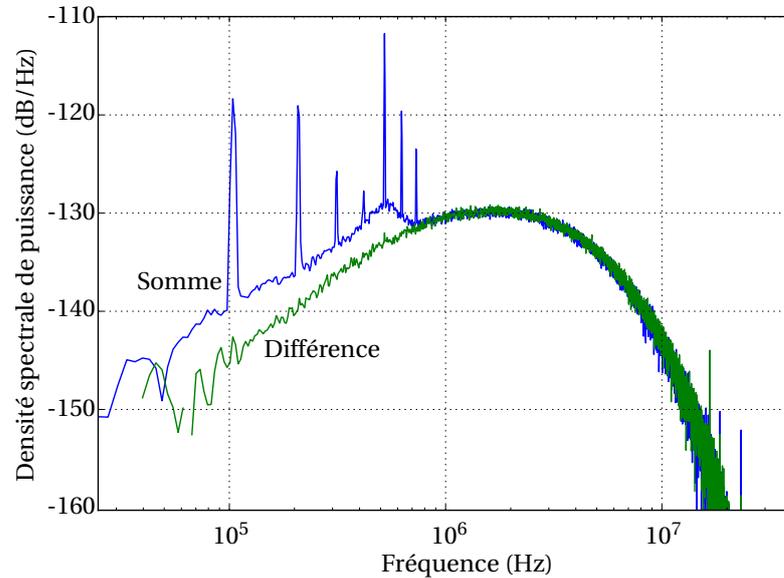


FIGURE 2.17 – Spectre de la somme et de la différence, pour un faisceau laser incident séparé en deux faisceaux de  $68 \mu\text{W}$  à  $775 \text{ nm}$ .

Enfin, pour valider la qualité du montage de mesure, on évalue de taux de réjection du système (figures 2.20). Autrement dit, on mesure la puissance de bruit de la différence des intensités, pour deux intensités rigoureusement égales, ici le signal d'une seule photodiode branchée parallèlement sur les deux entrées. Ce taux de réjection représente la réduction de bruit maximale qu'on est capable de mesurer dans un montage de corrélation entre deux faisceaux. Dans les données présentées, ce taux de réjection est supérieur à  $35 \text{ dB}$ , donc nous serons capables de mesurer  $35 \text{ dB}$  d'écart entre le bruit de la somme et de la différence des intensités.

### Équilibrage des signaux

L'équilibre des intensités est un paramètre critique pour atteindre des niveaux de bruit bas sur la différence des intensités. C'est ce qui nous a amené à imaginer et étudier des structures où les faisceaux générés par l'oscillation paramétrique sont dégénérés en énergie de façon à être équilibrés en intensité (partie 1.5). Nous développerons dans la partie 3.7.4, en comparaison avec nos mesures sur les fils photoniques, comment le déséquilibre dû à la structure peut détruire les corrélations quantiques. Dans l'annexe A, nous calculons comment des pertes optiques dans le montage de mesure de bruit peut aussi faire disparaître les corrélations quantiques.

Mentionnons cependant qu'il est possible de compenser à posteriori une partie de l'effet du déséquilibre. Cette technique est désignée par le terme *external balancing* dans la référence [7]. Quand la collection est imparfaite, ou quand les faisceaux à mesurer sont directement déséquilibrés en sortie de l'échantillon, on peut utiliser des densités optiques pour atténuer un faisceau et compenser le déséquilibre. Ceci permet de compenser partiellement le bruit en excès qui est partagé par les deux faisceaux. Dans le cas où on fait l'acquisition du signal de chacune des deux

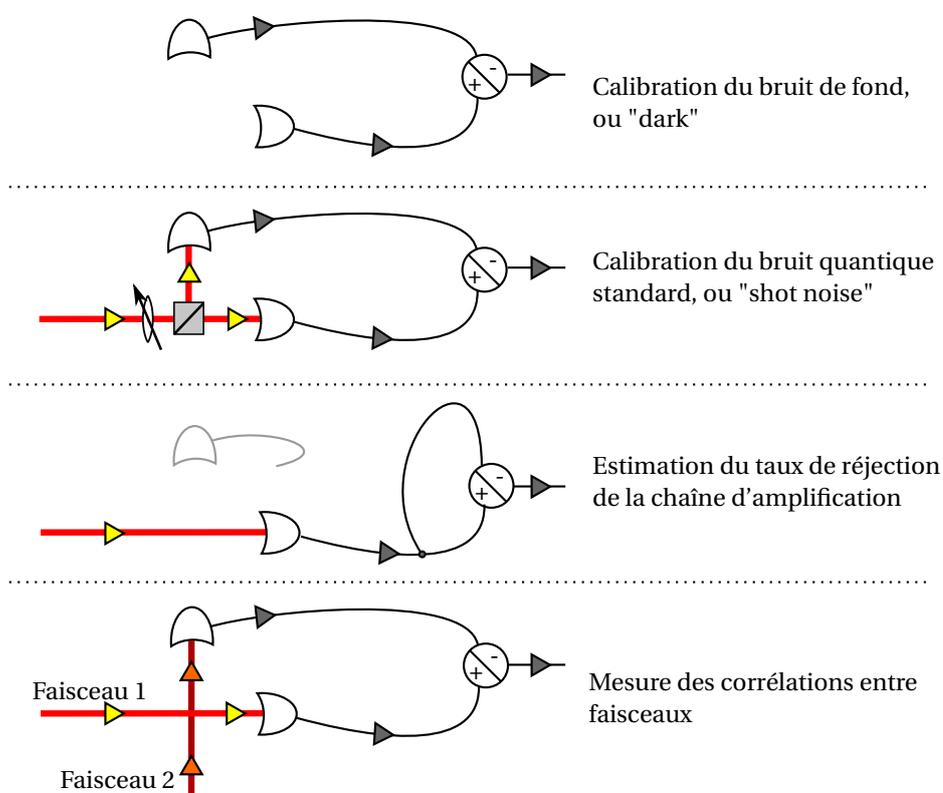


FIGURE 2.18 – Montages de calibration de la mesure de corrélations d'intensités

photodiodes avec l'oscilloscope, comme c'est le cas dans cette thèse, on peut faire l'équilibrage numériquement, directement sur les données temporelles de l'acquisition. Dans les mesures de bruit réalisées dans cette thèse, nous avons accordé une attention particulière à cet aspect. Les résultats présentés par exemple dans la partie 3.7 ont été traités avec cette technique.

### Saturation et atténuation

Les chaînes d'amplification des photodiodes peuvent saturer si les faisceaux sont de trop forte intensité. C'est le cas quand l'échantillon est excité à forte puissance. C'est aussi le cas pour les échantillons de fils photoniques où, comme nous le verrons, les faisceaux à analyser sont extrêmement bruités, ce qui tend à faire saturer la voie hautes fréquences. On évite la saturation en atténuant les deux faisceaux. Pour préserver leur équilibre, on fait passer les deux faisceaux par le même jeu de densités optiques. Après acquisition, on peut tenir compte des densités optiques dans le traitement des données pour récupérer le spectre de bruit des faisceaux non atténués (en utilisant notamment les formules de l'annexe A).

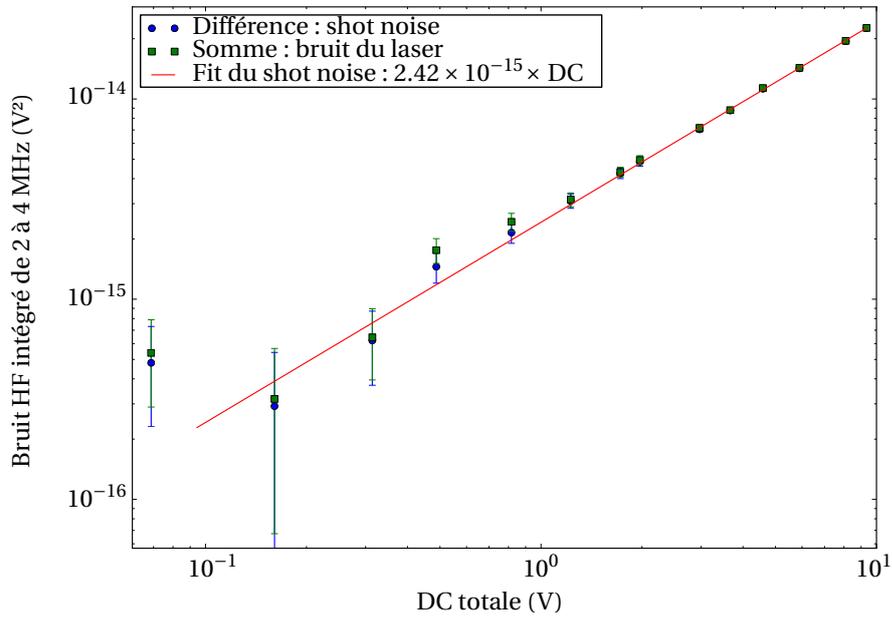


FIGURE 2.19 – Mesure de calibration du shot noise en fonction de la puissance. La somme et la différence varient linéairement avec la puissance.

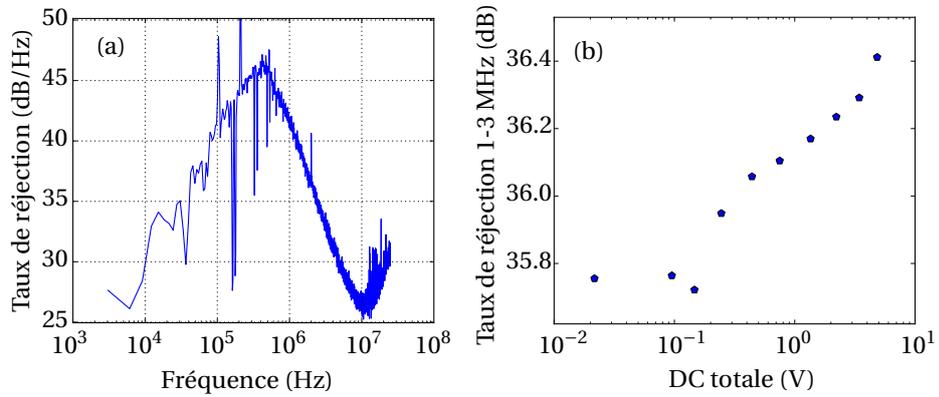


FIGURE 2.20 – (a) Spectre du taux de rejection de la chaîne d'amplification quand une photodiode est éclairée par un faisceau laser de  $68 \mu\text{W}$  à  $775 \text{ nm}$ . (b) Mesure du taux de rejection de la chaîne d'amplification, dans la bande de fréquence 1-3 MHz, en fonction de la puissance (pour le montage de mesure comprenant un soustracteur, un buffer, et l'oscilloscope).

## Conclusion

Nous avons parcouru dans ce chapitre une partie de l'éventail des techniques expérimentales employées dans cette thèse. Par la suite, nous reproduirons régulièrement des images obtenues avec la caméra CCD, le spectromètre ou encore le montage de mesure de bruit de photons, tels qu'ils ont été décrits ici. Les informa-

tions présentées sont importantes pour comprendre la nature des quantités que l'on mesure dans chaque configuration de l'expérience. Elles permettent d'analyser si la précision des données obtenues est limitée par le dispositif de mesure (par exemple, les photodiodes) ou par l'objet qui produit les observables (la microcavité). Quand c'est possible, une bonne connaissance du matériel permet d'améliorer la précision des mesures, ou de pointer du doigt rapidement une faiblesse dans le protocole expérimental. Dans les chapitres suivants, nous présenterons nos résultats expérimentaux, classés par thèmes.

## Références

1. HOBBS, P. C. D. *Building Electro-Optical Systems : Making It All Work* (John Wiley et Sons, 2009).
2. HAMAMATSU *Photodiode Technical Information* <[http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/SSD/photodiode\\_technical\\_information.pdf](http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/SSD/photodiode_technical_information.pdf)>.
3. ROSENCHER, E. & VINTER, B. *Optoelectronics* (Cambridge University Press, 2002).
4. HAMAMATSU *Technical Information : Characteristics and use of SI APD (Avalanche Photodiode)* <[http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/SSD/Characteristics\\_and\\_use\\_of\\_SI\\_APD.pdf](http://sales.hamamatsu.com/assets/applications/SSD/Characteristics_and_use_of_SI_APD.pdf)>.
5. TEXAS INSTRUMENTS & BURR-BROWN *Application Bulletin : Noise Analysis of FET Transimpedance Amplifiers*.
6. LEACH, J. Noise Analysis of Transformer-Coupled Preamplifiers. *J. Audio Eng. Soc* **40**, 3–11 (1992).
7. FABRE, C., GIACOBINO, E., HEIDMANN, A. & REYNAUD, S. Noise characteristics of a non-degenerate Optical Parametric Oscillator - Application to quantum noise reduction. *Journal de Physique* **50**, 1209–1225 (1989).



## Chapitre 3

# Oscillation paramétrique optique dans les fils photoniques

L'oscillation paramétrique optique apparaît dans une structure quand les deux conditions suivantes sont réunies : le milieu doit fournir un gain non-linéaire supérieur aux pertes, et la conservation de l'énergie et du vecteur d'onde doit pouvoir être assurée entre les modes initiaux et finaux. Dans les microcavités, les excitons des puits quantiques sont responsables du gain. Pour ce qui est de la conservation de l'énergie et du vecteur d'onde dans les microcavités planaires, elle implique que l'oscillation paramétrique apparaisse [1–3] dans des configurations où les polaritons complémentaires ont une forte composante excitonique, de sorte que les faisceaux sortants sont très déséquilibrés en intensité, ce qui réduit leur capacité à être quantiquement corrélés. De plus, le pompage doit être réalisé à un angle d'incidence non nul, ce qui limite les possibilités d'intégration du dispositif. Enfin, l'échantillon doit être maintenu à une température cryogénique pour préserver le couplage fort qui est indispensable à l'accord de phase.

Pour s'affranchir de ces contraintes, ce qui est souhaitable pour obtenir un micro-OPO fonctionnant à haute température, il est possible de structurer le système de manière à disposer de modes photoniques supplémentaires. Plusieurs approches permettent d'atteindre ce résultat. Dans les chapitres 4 et 5, nous traitons le cas des microcavités multiples, où on ajoute des modes photoniques en couplant plusieurs cavités entre elles, en les empilant. Dans ce chapitre 3, nous nous intéressons à une approche qui consiste à graver une microcavité planaire dans une direction [4, 5]. À cause du contraste d'indice entre la cavité et l'extérieur, nous verrons que la gravure crée un confinement photonique latéral qui conduit à une quantification supplémentaire. De nouveaux modes quantifiés apparaissent alors, avec lesquels on peut observer l'OPO en pompant en incidence normale. Nous chercherons dans ce chapitre à identifier et caractériser les processus OPO dégénérés en énergie. Nous verrons notamment l'effet de la polarisation dans les fils, qui permet de sélectionner un mécanisme paramétrique qui inverse la polarisation. Nous étudierons le comportement en puissance de l'OPO, notamment en fonction du désaccord entre les modes photoniques et excitoniques. Nous vérifierons que ce comportement correspond tout à fait à un modèle de polaritons en interaction, qui est lui-même l'ana-

logue du mélange d'ondes dans un milieu en  $\chi^{(3)}$  comme nous l'avons décrit dans le chapitre 1.

L'application première de l'oscillation paramétrique, dans les cristaux non-linéaires massifs, est la production de faisceaux à de nouvelles longueurs d'onde à la demande, en ajustant la résonance de la cavité. Ici, nous observerons un processus dégénéré en énergie, dans lequel on ne produit pas de nouvelles fréquences. Par contre, les autres propriétés de l'oscillation paramétrique, et en tout premier lieu les propriétés des fluctuations des champs signal et complémentaire, sont du plus grand intérêt. Nous étudierons donc le bruit de photon des faisceaux, avec l'objectif de comprendre si le régime des corrélations quantiques est accessible. Nous verrons que ce n'est pas le cas dans les fils étudiés, et essaierons de discuter de l'origine des excès de bruit mesurés.

### 3.1 État de l'art

La gravure latérale de microcavités planaires pour en faire des "micropiliers" est pratiquée depuis les années 80, d'abord appliquée aux microrésonateurs [6], consistant en microcavités sans puits quantiques. Puis des micropiliers contenant de multiples puits quantiques (MQW) ont été étudiés avec succès pour obtenir la bistabilité [7].

Plus tard, des microcavités gravées dans une seule direction, produisant des fils photoniques tels qu'on les étudie dans ce chapitre, ont été étudiées en photoluminescence [8, 9]. DASBACH *et al.* [10][11] ont ensuite observé des mécanismes de diffusion paramétrique en excitation résonante. Au laboratoire Pierre Aigrain [5, 12] un mécanisme particulier d'oscillation paramétrique a été observé dans des fils semblables. Ce processus dégénéré en angle et non-dégénéré en énergie produit deux faisceaux signal et complémentaire en incidence normale, comme la pompe, et en inversant la polarisation. Très récemment, WERTZ *et al.* [13] ont utilisé des fils photoniques pour observer la condensation de polaritons dans des fils photoniques, mettant en évidence la cohérence du condensat sur des très grandes longueurs et la possibilité de contrôler optiquement le condensat en créant localement un potentiel répulsif.

Pendant ce temps, les autres approches permettant de créer un confinement latéral ont été poursuivies. Il est possible de graver des motifs de toutes sortes sur une cavité planaire, créant ainsi un grand nombre de modes délocalisés[14]. Les micro-piliers, dans lequel la lumière est confinée dans les trois directions de l'espace, ont aussi permis l'observation du laser à polaritons [15] et l'oscillation paramétrique[16]. Notons que dans les micropiliers, les faisceaux générés par l'oscillation paramétrique sont superposés spatialement, contrairement aux processus dégénérés en énergie que nous présentons dans cette thèse où les faisceaux sont clairement séparés angulairement, ce qui permet de faire des mesures sur les faisceaux indépendamment sans avoir recours à un spectromètre.

### 3.2 Structure des fils photoniques

Nous étudions dans ce chapitre des fils réalisés au Laboratoire de Photonique et Nanostructures par gravure d'un échantillon de microcavité planaire de grande qualité. La même microcavité planaire est notamment décrite et utilisée dans les

références [17] (non gravée) et [13] (gravée en fils, utilisée pour la condensation). Elle consiste en une cavité  $\frac{\lambda}{2}$ , composée de  $\text{Ga}_{0.05}\text{Al}_{0.95}\text{As}$ , incluse entre deux miroirs de Bragg de 26 et 30 paires de  $\text{Ga}_{0.05}\text{Al}_{0.95}\text{As} / \text{Ga}_{0.80}\text{Al}_{0.20}\text{As}$  à l'avant et à l'arrière. Dans cette structure sont insérés 3 groupes de 4 puits quantiques de GaAs de 7 nm d'épaisseur. Le premier groupe est inséré au centre la cavité  $\frac{\lambda}{2}$  où se trouve un ventre du champ, et les deux autres groupes sont insérés dans la première paire de couches des miroirs de Bragg de part et d'autre de la cavité, là où se trouvent les premiers ventres secondaires du champ. À partir de cette microcavité simple, des fils photoniques sont obtenus par lithographie électronique et gravure ionique réactive (figure 3.1).

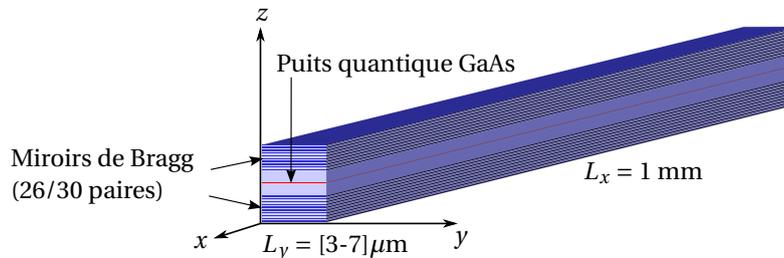


FIGURE 3.1 – Schéma d'un fil photonique.

L'échantillon (figure 3.2) contient finalement des fils de 5 largeurs différentes : 3, 4, 5, 6 et 7  $\mu\text{m}$ . Nous avons choisi ces largeurs qui correspondent à un compromis entre les pertes optiques par les parois latérales, qui augmentent quand le fil est trop étroit, et la levée de dégénérescence entre les modes de fils (voir partie 3.3.1), qui est trop petite devant les largeurs de raies quand le fil est plus large que 7  $\mu\text{m}$ . Chaque fil a une longueur de 1 mm, ils sont espacés de 60  $\mu\text{m}$ . Nous avons choisi une grande longueur des fils pour pouvoir les exciter avec un spot très long, ce qui réduit le problème des effets de taille finie (voir partie 4.5.4 où ce problème est détaillé). La microcavité de départ contient un gradient sur l'épaisseur  $L_c$  de la cavité qui sert à choisir le désaccord cavité-exciton. Les fils sont gravés de telle sorte que le gradient d'épaisseur soit perpendiculaire au fil. Autrement dit, si l'axe du fil est l'axe  $x$ ,  $\vec{\nabla} L_c$  est dans la direction  $y$ . Ainsi, sur toute la longueur du fil, le désaccord est constant, ce qui permet d'exciter avec un spot de grande taille qui sera en résonance sur toute sa longueur. En parcourant l'échantillon d'un bord à l'autre, on parcourt une large gamme de désaccord cavité-exciton allant environ de -20 à +10 meV. Comme on le verra plus loin, la résonance excitonique se trouve autour de 1.605 eV, et cette énergie  $E_X$  est légèrement variable selon la position sur l'échantillon.

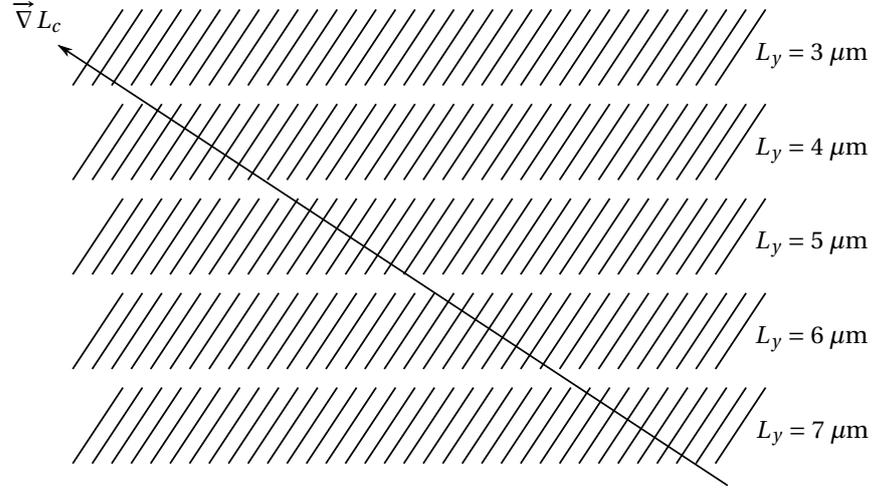


FIGURE 3.2 – Schéma des fils disponibles sur l'échantillon.

### 3.3 Modes des fils photoniques

#### 3.3.1 Confinement optique latéral

##### Dispersion d'énergie

La relation entre l'énergie et le vecteur d'onde d'un photon dans une cavité s'écrit simplement :

$$E_c(\vec{k}) = \frac{\hbar c}{n_c} |\vec{k}| \quad (3.1)$$

$$= \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + k_z^2} \quad (3.2)$$

Dans une microcavité planaire, si  $z$  est l'axe de croissance, alors  $k_z$  est quantifié :  $k_{z0} = \frac{(p+1)\pi}{L_c}$ . Typiquement, une seule valeur de  $p$  doit être prise en compte, les autres correspondant à des modes dont l'énergie sort de la bande d'arrêt des miroirs de Bragg (l'intervalle spectral libre de la cavité planaire est plus grande que la bande d'arrêt des miroirs). Ainsi, l'énergie  $E_c$  prend la forme :

$$E_c^{2D}(k_x, k_y) = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_x^2 + k_y^2 + \left(\frac{(p+1)\pi}{L_c}\right)^2} \quad (3.3)$$

$$= E_0 \sqrt{1 + \frac{k_x^2 + k_y^2}{k_{z0}^2}} \quad (3.4)$$

Dans les fils photoniques, la gravure latérale introduit une quantification supplémentaire sur l'axe  $y$  :  $k_{y,j} = \frac{(j+1)\pi}{L_y}$ , où  $j$  est un nouveau nombre quantique entier positif, qui identifie une des sous-branches dans lesquelles le mode de cavité s'est

divisé :

$$E_c^{1D}(j, k_x) = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_x^2 + \left(\frac{(j+1)\pi}{L_y}\right)^2 + \left(\frac{(p+1)\pi}{L_c}\right)^2} \quad (3.5)$$

$$= E_0 \sqrt{1 + \left(\frac{(j+1)\pi}{L_y}\right)^2 \frac{1}{k_{z0}^2} + \frac{k_x^2}{k_{z0}^2}} \quad (3.6)$$

Ainsi, pour chaque mode  $j$ , l'énergie est constante selon la direction  $y$  (figure 3.3). Par contre, on retrouve une dispersion hyperbolique dans la direction  $x$ , comme dans les cavités planaires. Puisque la bande d'arrêt des miroirs est de taille finie, seul un nombre fini de sous-branches photoniques sont effectivement confinées dans la structure, et c'est donc seulement un ensemble borné de  $j$  qui est à considérer.

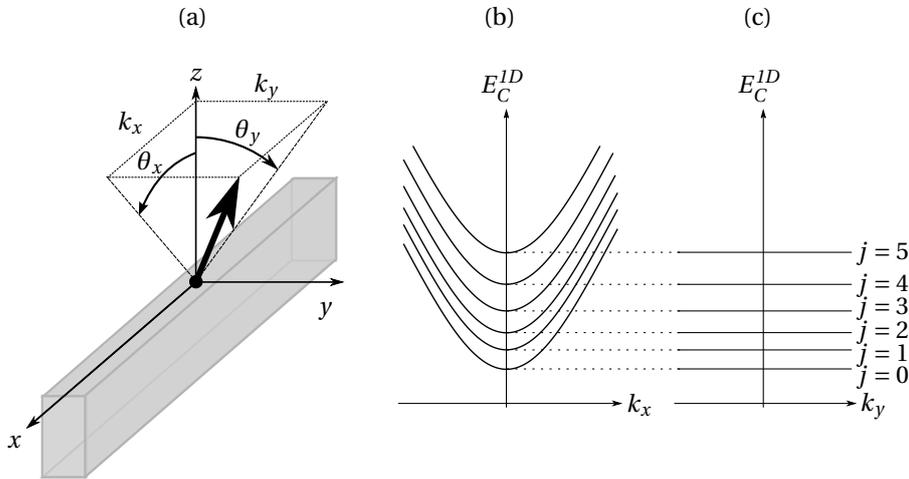


FIGURE 3.3 – (a) Direction d'observation et définition des angles  $\theta_x$  et  $\theta_y$  et des vecteurs d'onde d'observation  $k_x$  et  $k_y$ . (b) Dispersion des six premières branches photoniques dans un fil en fonction du vecteur d'onde d'observation  $k_x$ . (c) Dispersion en fonction du vecteur d'onde d'observation  $k_y$ .

### Fonctions d'onde et diagramme d'émission

La fonction d'onde du champ électrique dans le fil est donnée par  $\mathcal{E}(x, y) \propto \exp(ik_x x)\mathcal{E}(y)$ , où on peut approximer la distribution le long de l'axe  $y$  par  $\mathcal{E}_j(y) \approx \cos(k_{y,j}y)$ , en choisissant  $y$  dans  $\left[-\frac{L_y}{2}, \frac{L_y}{2}\right]$  [9]. La figure 3.4 reproduit les fonctions d'onde de quelques modes.

Même si l'énergie n'est pas dispersée selon l'axe  $y$ , la forme de la fonction d'onde entraîne une nette dépendance de l'intensité de l'émission (ou de l'absorption) le long de cet axe. Ainsi, l'intensité d'émission présente des lobes en fonction de l'angle  $\theta_y$  d'observation [9]. Le *diagramme d'émission* correspondant est le module carré de la transformée de Fourier selon l'axe  $y$  de la fonction d'onde (figure 3.4). En fonction du vecteur d'onde d'observation  $k_y$ , il dépend de la somme de deux sinus cardi-

naux :

$$|\widetilde{\mathcal{E}}_j(k_y)|^2 \propto \left( \text{sinc} \left( (k_y - k_{y,j}) \frac{L_y}{2} \right) + \text{sinc} \left( (k_y + k_{y,j}) \frac{L_y}{2} \right) \right)^2 \quad (3.7)$$

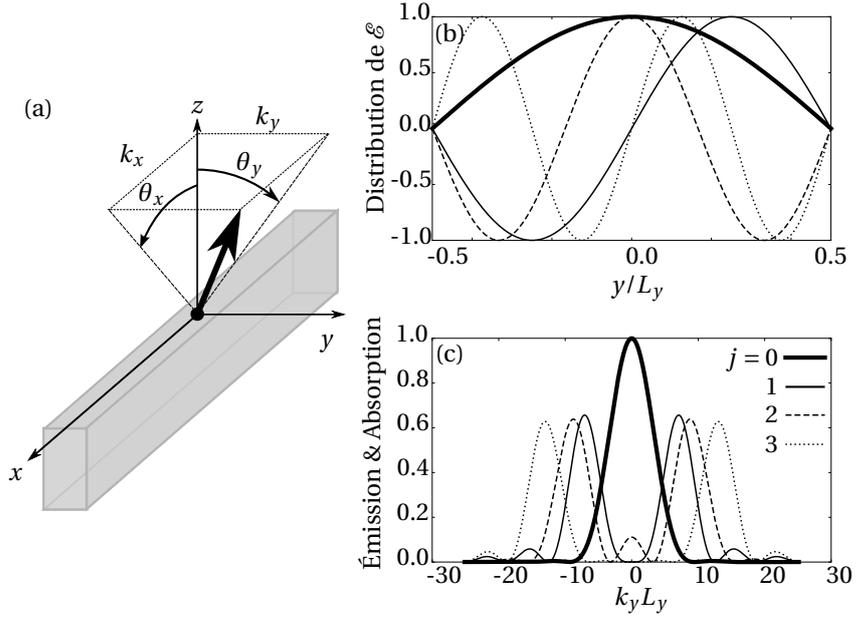


FIGURE 3.4 – (a) Direction d’observation et définition des angles  $\theta_x$  et  $\theta_y$  et des vecteurs d’onde d’observation  $k_x$  et  $k_y$ . (b) Fonctions d’onde du champ électrique pour les 4 premiers modes du fil. (c) Diagramme d’émission des 4 premiers modes du fil, normalisé au maximum du diagramme de  $j = 0$ .

Pour le mode fondamental  $j = 0$ , l’émission et l’absorption sont concentrées autour de l’incidence normale. Le mode d’indice immédiatement supérieur,  $j = 1$ , n’émet au contraire rigoureusement rien en incidence normale, mais au contraire présente deux lobes symétriques autour de l’incidence normale. Plus généralement, le diagramme d’émission présente toujours 2 maxima (sauf pour  $j = 0$ , où il n’y a qu’un maximum à  $k_x = 0$ ) et a la même parité que  $j$ .

### 3.3.2 Couplage avec les excitons

Dans le régime de couplage fort, chacun des modes photoniques du fil est maintenant couplé au mode excitonique.

Le confinement dû à la gravure n’a que très peu d’effet sur l’énergie des excitons. En effet, écrivons l’énergie des excitons 1s confinés par la gravure selon la direction

$y$  :

$$E_{X,1s}^{1D}(m, K_x) = E_{X,1s}^{2D}(K=0) + \frac{\hbar^2 K_{\parallel}^2}{2M} \quad (3.8)$$

$$= E_{X,1s}^{2D}(K=0) + \frac{\hbar^2 K_x^2}{2M} + \frac{\hbar^2 K_y^2}{2M} \quad (3.9)$$

$$= E_{X,1s}^{2D}(K=0) + \frac{\hbar^2 K_x^2}{2M} + \frac{\hbar^2 (m+1)\pi^2}{2M L_y^2} \quad (3.10)$$

Nous pouvons évaluer l'écart entre les états  $m=0$  et  $m=1$  :  $E_{X,1s}^{1D}(1, k_x) - E_{X,1s}^{1D}(0, k_x) = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2M L_y^2} \approx 30$  neV. Ainsi, le splitting entre les états excitoniques dû au confinement est négligeable, pour tous les états  $m$  petits<sup>1</sup>

En revanche, le confinement latéral a un effet sur le couplage entre les photons et les excitons. Dans les cavités planaires, l'invariance par translation dans le plan des couches impose que les photons de vecteur d'onde  $k_{\parallel}^C$  ne se couplent qu'aux excitons de vecteur d'onde  $k_{\parallel}^X = k_{\parallel}^C$ . Dans les fils, cette invariance par translation est maintenue dans la direction  $x$ , mais elle est brisée dans la direction  $y$ . Ainsi, un mode de fil  $j$  est couplé au mode excitonique  $m$  qui a la même symétrie latérale [8], c'est-à-dire :

$$m = j \quad (3.11)$$

L'hamiltonien  $H$  décrivant le système constitué des états excitoniques  $E_X(m, K_X)$  linéairement couplé à  $N$  modes  $E_C^{1D}(j, k_x)$  du fil est donc diagonal par bloc de taille  $2 \times 2$ , et s'écrit donc<sup>2</sup> :

$$H = \begin{pmatrix} H_0 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & H_1 & \dots & 0 \\ \vdots & & & \vdots \\ 0 & 0 & \dots & H_N \end{pmatrix} \quad (3.13)$$

$$H_n = \begin{pmatrix} E_{X,1s}^{1D}(m=n, k_x) & \frac{\hbar\Omega}{2} \\ \frac{\hbar\Omega}{2} & E_C^{1D}(j=n, k_x) \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Ici, le couplage  $\frac{\hbar\Omega}{2}$  est supposé constant quel que soit le mode photonique, ce qui est au moins vrai pour les faibles  $j$  [8]. Quand ce couplage est grand devant

1. Il n'y a encore que  $6 \mu\text{eV}$  d'écart entre l'état  $m=100$  et l'état  $m=101$ .
2. Notons que ce hamiltonien n'est pas :

$$\begin{pmatrix} E_X & \frac{\hbar\Omega}{2} & \frac{\hbar\Omega}{2} & \dots & \frac{\hbar\Omega}{2} & \\ \frac{\hbar\Omega}{2} & E_C^{1D}(0, k_x) & 0 & 0 & \dots & 0 \\ \frac{\hbar\Omega}{2} & 0 & E_C^{1D}(1, k_x) & 0 & \dots & 0 \\ \vdots & & & & & 0 \\ \frac{\hbar\Omega}{2} & 0 & 0 & 0 & \dots & E_C^{1D}(N, k_x) \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

En effet, l'opérateur ci-dessus couplerait tous les modes photoniques au même exciton, ce qui ne respecte pas les règles de symétrie, et ne produit pas l'anticroisement observé.

l'amortissement des composante du système, on trouve donc une situation de couplage fort dans laquelle les modes propres sont des polaritons obtenus par diagonalisation de  $H$ . Nous verrons plus loin un exemple concret de dispersion des polaritons (figure 3.6). On retrouvera sur les dispersions les caractéristiques du couplage fort, notamment les inflexions typiques des polaritons sous l'exciton. Par ailleurs, chaque mode de polariton hérite du diagramme d'émission du mode photonique dont il est issu.

### 3.4 Caractérisation en photoluminescence

Avant d'aborder les propriétés non-linéaires des fils photoniques, nous caractérisons ceux-ci en s'intéressant à leur photoluminescence en excitation non-résonnante. Les modes de polaritons dans les fils sont aussi visibles dans des mesures de transmission ou de réflectivité, mais l'observation de la photoluminescence a l'avantage de nous donner instantanément une image de la dispersion  $(E, \vec{k})$ <sup>3</sup>.

On excite donc l'échantillon à haute énergie, au-dessus de la bande d'arrêt des miroirs de Bragg, et on observe l'émission de la cavité à proximité de l'énergie de l'exciton. La figure 3.5 reproduit une dispersion obtenue ainsi sur un fil de  $5 \mu\text{m}$ . On note que l'ouverture numérique de notre dispositif de visualisation ne nous donne accès qu'aux angles inférieurs à  $20^\circ$ . On distingue sur cette dispersion 6 modes de polaritons bas ainsi qu'une raie large située autour de  $1.607 \text{ eV}$ . On attribue cette bande diffuse à l'exciton.

La variation de l'intensité de chacun des modes de polariton le long de l'axe des angles correspond au diagramme d'émission établi à la partie 3.3.1. En effet, le fil n'est ni aligné avec la fente du spectromètre, ni perpendiculaire à celle-ci, mais plutôt orienté à environ  $45^\circ$ . Ainsi, l'angle d'observation  $\theta_0$  est une combinaison de  $\theta_x$  et  $\theta_y$ . La dispersion de l'énergie avec l'angle vient de la composante en  $\theta_x$ , tandis que la variation angulaire de l'intensité vient de la composante en  $\theta_y$ . Cette configuration où la fente n'est pas perpendiculaire a l'avantage de permettre la visualisation de tous les modes simultanément. Pour comparaison, en mettant la fente du spectromètre à angle droit avec le fil, seuls les modes pairs sont visibles (à  $\theta_y = 0$ ). Inversement, en alignant la fente du spectromètre avec le fil, on ne peut plus observer la dispersion angulaire des modes, pourtant indispensable au processus OPO que nous étudierons ensuite.

À partir du hamiltonien 3.13, on peut reproduire les modes de polaritons visibles sur la dispersion et en extraire la taille du fil, le splitting de Rabi, la position de l'exciton et encore la position du mode fondamental de la cavité. La figure 3.6 reproduit un calcul réalisé sur la dispersion 3.5 après avoir repéré manuellement quelques points caractéristiques de la dispersion. Un algorithme des moindres carrés optimise ensuite l'ensemble des paramètres ajustables pour que les modes propres de l'hamiltonien 3.13 passent au plus près de tous ces points. L'accord entre le modèle et la dispersion expérimentale est très satisfaisant. On obtient les paramètres suivant :

3. En contrepartie, les processus de relaxation qui aboutissent à la luminescence imposent une distribution thermique sur l'intensité émise. De plus, les processus de relaxation présentent des effets de *bottlenecks* [18].

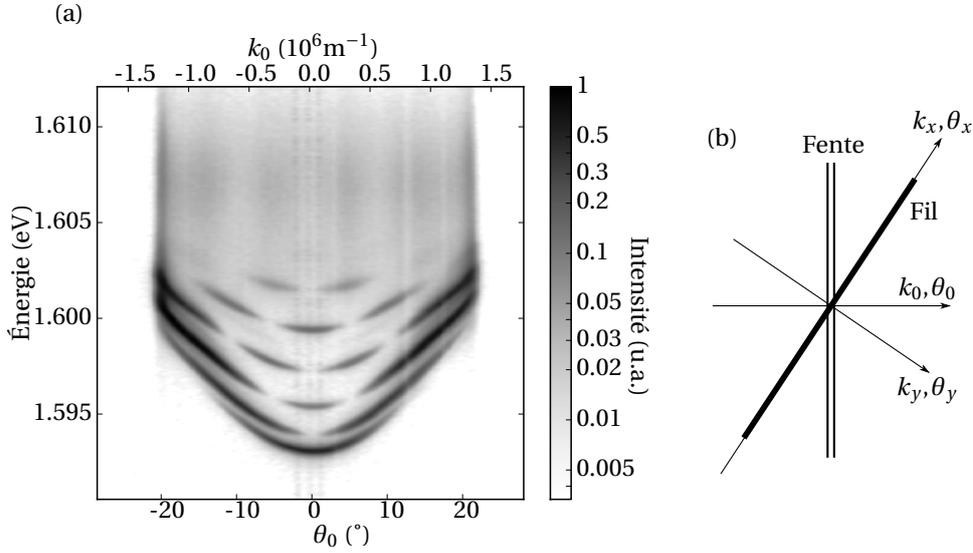


FIGURE 3.5 – (a) Dispersion de photoluminescence expérimentale d'un fil de  $5 \mu\text{m}$ , obtenue en polarisation croisée avec le laser d'excitation. (b) Directions du fil et de la fente du spectromètre. Les angles  $\theta_0$  d'observation sont des combinaisons des angles  $\theta_x$  et  $\theta_y$ , respectivement parallèle et perpendiculaire au fil.

|               |                   |
|---------------|-------------------|
| $E_0$         | 1.59414 eV        |
| $E_X$         | 1.6061 eV         |
| $\hbar\Omega$ | $(10 \pm 2)$ meV  |
| $L_y$         | $5.6 \mu\text{m}$ |

L'estimation de  $L_y$  est une vérification de la largeur attendue des fils. Notons également que l'évaluation du splitting de Rabi  $\hbar\Omega$  est extrêmement dépendante de l'évaluation de l'énergie de l'exciton  $E_X$ , ce qui introduit l'importante incertitude indiquée dans le tableau. Pour avoir une estimation plus fiable de la position de l'exciton et du splitting de Rabi, il serait nécessaire de connaître la dispersion des modes de polariton haut. Or, ceux-ci ne sont pas visibles en photoluminescence.

### 3.4.1 Dépendance en épaisseur

La figure 3.7 reproduit des dispersions obtenues pour cinq fils d'épaisseurs différentes. La taille du fil joue sur deux propriétés des dispersions. D'abord, l'écart en énergie entre les fils est d'autant plus grand que le fil est étroit. En effet, plus le confinement est fort, plus les modes sont séparés, comme le traduit la quantification  $k_{y,j} = \frac{(j+1)\pi}{L_y}$ . D'autre part, les taches formées par les modes le long de l'axe des angles sont d'autant plus larges et éloignées du centre que le fil est étroit. Ceci correspond au diagramme d'émission (équation 3.7) qui est fonction de  $(k_y \pm k_{y,j})L_y$ , où  $L_y$  joue donc le rôle d'un facteur d'échelle et de décalage pour  $k_y$ . Notons enfin que l'exciton se trouve à des énergies différentes dans chacune de ces dispersions (de 1.604 eV à 1.611 eV), mais ceci n'est pas dû à la taille des fils, mais plutôt au

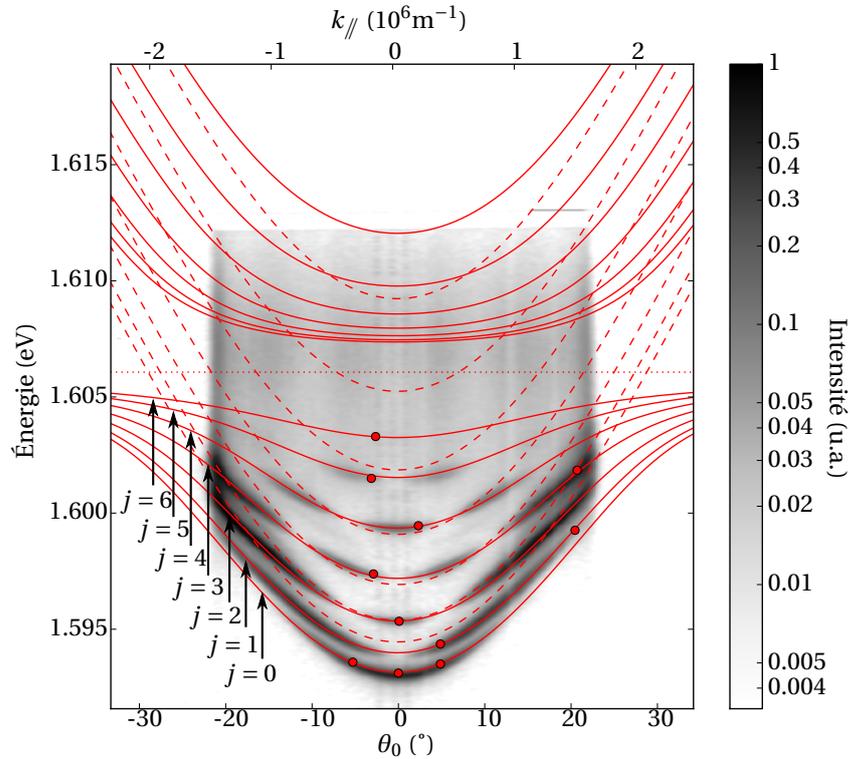


FIGURE 3.6 – Dispersion de photoluminescence identique à la figure 3.5, sur laquelle sont représentés en traits pleins le fit des modes de polaritons correspondant au hamiltonien 3.13. L’ajustement des paramètres est obtenu à partir des 11 points  $\bullet$ , repérés manuellement. La position de l’exciton est indiquée par la ligne en pointillés, tandis que les modes non couplés du fil sont représentés par les courbes en tirets. On a également représenté les modes de polaritons haut, non visibles sur la dispersion.

léger gradient d’épaisseur présent dans le puits quantique qui décale lentement la résonance quand on se déplace sur l’échantillon.

### 3.4.2 Levée de dégénérescence en polarisation

Les fils photoniques présentent une levée de dégénérescence en polarisation, précédemment étudiée par DASBACH *et al.* [5]. Nous l’observons très nettement dans notre échantillon, comme reproduit sur la figure 3.8. On mesure un écart de 0.71 meV entre les deux sous-branches du mode  $j = 0$ , 1.12 meV entre les sous-branches de mode  $j = 1$ , et enfin 1.39 meV entre les sous-branches du mode  $j = 2$ . Il y a donc une augmentation de ce splitting avec l’indice du mode photonique. L’origine de cette levée de dégénérescence est attribuée [5, 12] aux contraintes thermiques. Les fils sont en effet collés à température ambiante sur le porte-échantillon en cuivre puis l’ensemble est refroidi aux températures cryogéniques. Des contraintes thermiques agissent alors dans les fils et dans le cuivre. Les fils sont collés avec un angle d’environ  $45^\circ$  par rapport à l’axe du porte-échantillon. Le fil étant une structure très anisotrope, de symétrie axiale, les contraintes thermiques sur le fil sont également

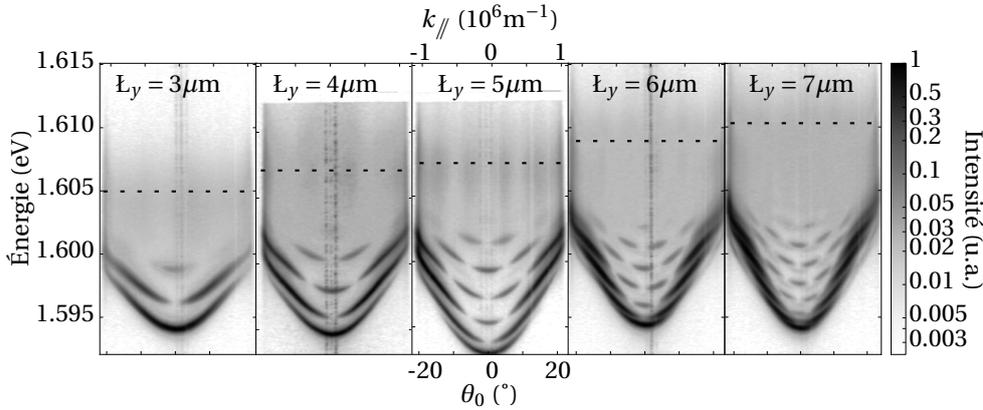


FIGURE 3.7 – Collection de dispersions obtenues pour 5 fils d'épaisseurs différentes. En pointillés on a représenté l'énergie de l'exciton, repérée grâce à la bande de luminescence diffuse.

anisotropes, et modifient de manière différente les paramètres de maille  $a_{\parallel}$  et  $a_{\perp}$ , respectivement dans l'axe du fil et perpendiculaire à cet axe. Enfin, ces modifications des paramètres de maille agissent sur les indices de refraction  $n_{\parallel}$  et  $n_{\perp}$ , qui décalent les énergies des modes photoniques<sup>4</sup>. Dans l'étude résonnante qui suit, cette levée de dégénérescence sera un paramètre important dans l'observation de l'oscillation paramétrique, comme il l'a été dans l'étude de l'oscillation paramétrique dite "verticale"[5].

### 3.4.3 Largeurs de raie

La mesure de photoluminescence permet finalement d'étudier les largeurs de raies polaritoniques, en fonction du désaccord notamment. Cette information est importante pour la compréhension des processus résonnants, en particulier dans l'analyse des seuils d'oscillation, comme nous le verrons dans la partie suivante. La figure 3.9 reproduit le résultat de la mesure de la largeur du mode  $j = 0$  en fonction de l'écart en énergie avec l'exciton, dans un ensemble de fils de  $4 \mu\text{m}$  d'épaisseur, en polarisation parallèle au fil, à faible puissance de pompe ( $\approx 1 \text{ mW}$ ). Dans le modèle simple des oscillateurs couplés, cette largeur s'exprime  $\gamma_P = X^2\gamma_X + C^2\gamma_C$ , où  $X$  et  $C$  sont les coefficients de Hopfield du polariton (voir partie 1.4). Le fit avec cette expression est reproduit sur la même figure, d'où on extrait  $\gamma_C = 0.1 \text{ meV}$ ,  $\gamma_X = 2.4 \text{ meV}$  et  $\Omega = 5.2 \text{ meV}$ . La valeur obtenue pour  $\Omega$  est nettement inférieure à celle obtenue à partir du fit de la position des modes ( $\approx 10 \text{ meV}$ , figure 3.6), ainsi le modèle des oscillateurs couplés ne réussit pas à rendre compte de façon cohérente du comportement de la largeur de raie et de la position des modes simultanément. Il est probable que l'élargissement inhomogène des excitons soit la cause de cette inco-

4. Il y a quelques différences entre les mesures tirées de l'échantillon étudié dans ce chapitre et les résultats présentés dans les références [5, 12]. Dans notre cas, le mode de plus basse énergie est polarisé dans l'axe du fil tandis que celui de plus haute énergie est polarisé perpendiculairement au fil, et le splitting est croissant avec l'indice  $j$ . Dans les références [5, 12], le modes sont ordonnés dans le sens inverse, et le splitting est décroissant. Les auteurs expliquaient cette variation en considérant le fait que le mode  $\parallel$  se rapproche avec l'exciton et est donc repoussé vers le mode  $\perp$ . Par ailleurs, ici, le splitting est de 2 à 4 fois plus grands que celui mesuré dans [5, 12], mais ceci reste dans l'ordre de grandeur du splitting calculé à partir des coefficients de déformation thermiques.

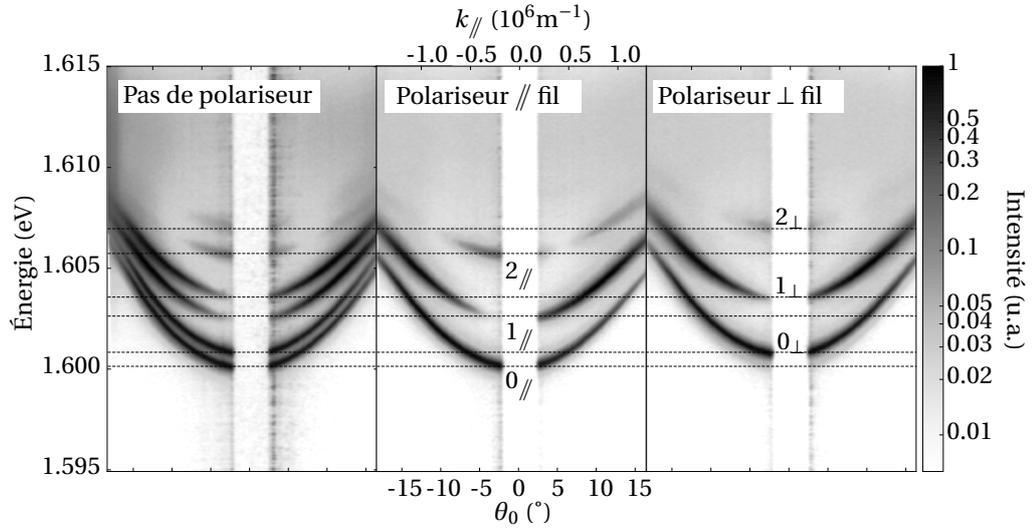


FIGURE 3.8 – Dispersions obtenues respectivement sans polariseur, avec un polariseur aligné par rapport au fil, et avec un polariseur perpendiculaire au fil, tous les autres paramètres étant maintenus constants. Les angles petits sont masqués pour éviter que la diffusion du laser sature le capteur en l’absence de polariseur et quand le polariseur est dans la direction du laser de pompe.

hérence [19]. Pour la suite de ce chapitre, nous retiendrons  $\gamma_C \approx 0.1$  meV,  $\gamma_X \approx 1$  meV et  $\Omega \approx 5$  meV.

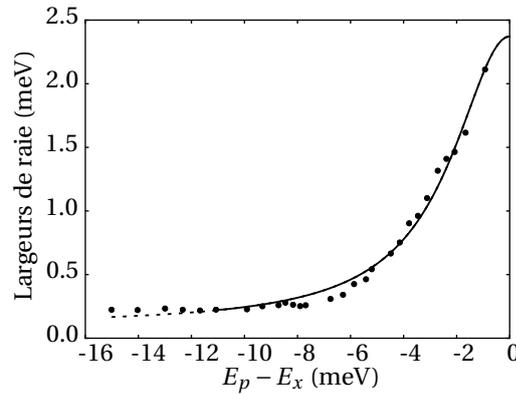


FIGURE 3.9 – Variation de la largeur de raie du mode  $j = 0$  en fonction de la distance avec l’exciton. Les points sont les données expérimentales, la courbe en trait plein est un fit avec la largeur prévue par le modèle des oscillateurs couplés, avec les paramètres  $\gamma_C = 0.1$  meV,  $\gamma_X = 2.4$  meV,  $\Omega = 5.2$  meV. La courbe est prolongée en pointillés dans la zone où la largeur mesurée est limitée par la résolution du spectromètre.

### 3.5 Oscillation paramétrique optique en excitation résonante

Après avoir caractérisé en détail les fils photoniques en excitation non-résonante, étudions l'émission non-linéaire obtenue en excitation résonnante. Précédemment, des processus d'oscillation paramétrique optique "verticaux" ont été observés dans ce même genre de fils [5, 10, 12]. Suite à l'excitation laser d'un mode de polaritons intermédiaire (le mode de pompe), des processus interbranches apparaissent dans lesquels un signal est produit sur un mode d'énergie inférieure, et un complémentaire sur un mode de polaritons d'énergie supérieure, en conservant l'énergie et le vecteur d'onde  $k_x$ . Dans le processus "vertical", tous les faisceaux sont en incidence normale, et c'est l'effet du couplage fort qui permet de trouver trois modes équidistants en énergie pour que l'oscillation puisse avoir lieu. Étant donné qu'il y a de nombreux modes dans les fils photoniques, une grande richesse de processus paramétriques de ce genre est accessible. Dans ce qui suit nous allons nous concentrer sur le processus dégénéré en énergie (figure 3.10), comme dans les autres chapitres de cette thèse. Ainsi, le signal et le complémentaire sont produits sur des modes qui partagent le même désaccord polariton-exciton, ce qui fait que les faisceaux sortants de la cavité sont naturellement équilibrés en intensité. Cette différence majeure avec les processus verticaux ou à "angle magique" fait de l'oscillation horizontale le meilleur candidat pour la production de photons jumeaux, ou quantiquement corrélés [20, 21].

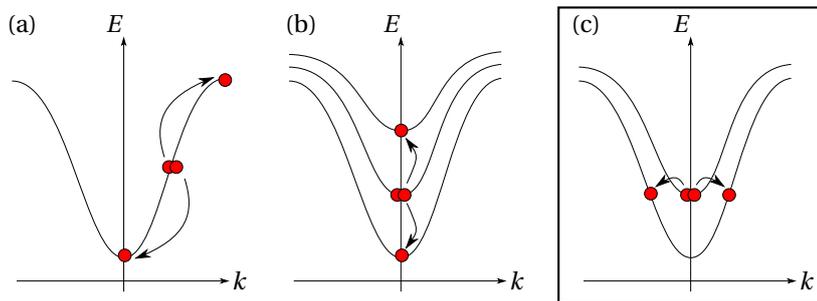


FIGURE 3.10 – Quelques processus paramétriques possibles dans les fils photoniques : (a) Diffusion intrabranche en pompant à angle non-nul, (b) Diffusion paramétrique interbranches "verticale", (c) Diffusion paramétrique dégénérée en énergie, que l'on cherche à obtenir dans cette thèse.

#### 3.5.1 Processus dégénéré en énergie

Les processus "horizontaux", dégénérés en énergie, sont possibles uniquement en excitant en incidence normale pour que le vecteur d'onde total  $k_x$  soit conservé. Il suffit donc a priori d'exciter un mode  $j > 0$  et d'observer la population sur les modes d'indices inférieurs, à la même énergie. En raison du diagramme d'émission présenté dans la partie 3.3.1, il faut de plus pomper avec un vecteur d'onde  $k_y$  où l'absorption est non-nulle, et autant que possible à un maximum. Le mode  $j = 0$  est le seul à avoir son maximum absolu en incidence normale. Grâce au splitting en polarisation de ce mode  $j = 0$ , il est possible de pomper sur une des sous-branches

de ce mode, et d'observer l'OPO sur l'autre sous-branche de ce mode. Nous allons donc exciter la sous-branche  $0_{\perp}$ , et chercher l'oscillation paramétrique sur la sous-branche  $0_{\parallel}$  située plus bas en énergie, en recherchant le processus  $(0_{\perp}, k_x = 0)^2 \rightarrow (0_{\parallel}, k_x = q) \times (0_{\parallel}, k_x = -q)$ . La figure 3.11 (a) illustre ce mécanisme sur la dispersion des polaritons. La figure 3.11 (b) reproduit une image expérimentale où le processus est effectivement observé en excitation résonnante, dans un fil de  $3 \mu\text{m}$ , à une puissance de 30 mW. Dans la suite, nous nous intéresserons aux caractéristiques de ce processus.

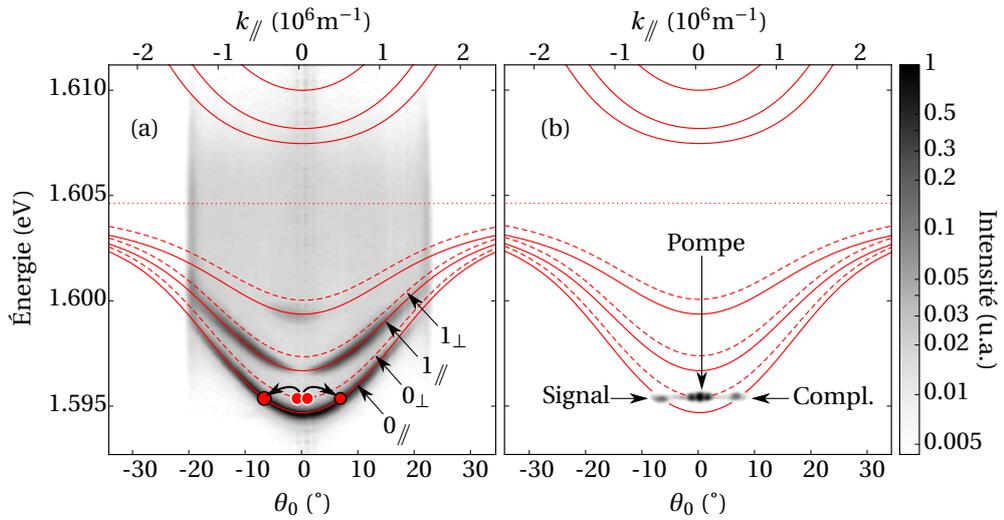


FIGURE 3.11 – (a) Dispersion en excitation non résonnante d'un fil de  $3 \mu\text{m}$ , en polarisation perpendiculaire le fil, à faible puissance (4 mW). Les traits pleins sont les fits des 3 premiers modes  $\parallel$  de polaritons, en tirets la position possible des modes  $\perp$ , et en pointillés l'énergie de l'exciton. Le mécanisme  $(0_{\perp}, k_x = 0)^2 \rightarrow (0_{\parallel}, k_x = q) \times (0_{\parallel}, k_x = -q)$  de diffusion paramétrique horizontale est représenté par des flèches. (b) Émission en excitation résonnante de la branche  $0_{\perp}$ , en incidence normale. Le laser de pompe est polarisé perpendiculairement à l'axe du fil. On observe l'apparition d'un signal et d'un complémentaire sur la branche  $0_{\parallel}$ , polarisés parallèlement au fil. Une partie de l'intensité de la pompe est encore visible, même avec un polariseur croisé.

### 3.5.2 Comportement en polarisation

Étant donné les sous-branches impliquées, le mécanisme d'oscillation paramétrique est sélectif en polarisation. Le laser de pompe doit être polarisé perpendiculairement au fil pour exciter efficacement la branche  $0_{\perp}$ . Les seuls états finaux disponibles dans le mécanisme horizontal sont situés sur la branche  $0_{\parallel}$ . Donc le signal et le complémentaire sont polarisés perpendiculairement, et perpendiculairement à la polarisation du laser de pompe.

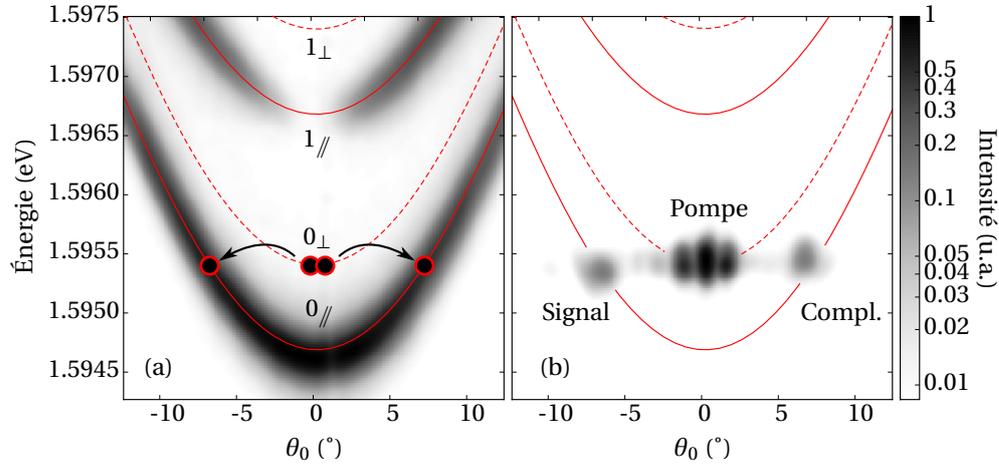


FIGURE 3.12 – (a) Dispersion en excitation non résonnante, *zoom* de la figure 3.11.a. (b) Émission en excitation résonnante, *zoom* de la figure 3.11.b. Notons que le signal et le complémentaire ne sont pas rigoureusement dégénérés en énergie.

### 3.5.3 Parité

En plus de conserver l'énergie et le vecteur d'onde total, le processus paramétrique doit aussi conserver la parité des modes dans le fil. L'état initial est un produit de deux états de polariton de pompe. C'est donc toujours un état pair. L'état final est le produit de l'état signal et de l'état complémentaire. On en conclut que le signal et le complémentaire doivent avoir la même parité (pair ou impair) pour que l'état final soit pair. Cette règle de sélection restreint les processus interbranches accessibles [10, 11], mais elle est toujours vérifiée dans le cas des processus horizontaux que nous considérons ici, puisque le signal et le complémentaire sont sur le même mode.

### 3.5.4 Suivi de l'accord de phase ( $E, k$ )

Pour prouver l'origine paramétrique du mécanisme, on étudie l'énergie et le vecteur d'onde du signal et du complémentaire quand on déplace légèrement la pompe autour de l'incidence normale. Grâce à la largeur finie de la raie  $0_{\perp}$  excitée par la pompe, il y a un petit intervalle angulaire dans lequel le laser reste suffisamment en résonance avec le mode pour pomper efficacement la structure quand on change l'angle d'incidence, sans ajuster l'énergie du laser. La figure 3.13 reproduit quelques images de l'émission obtenues pour différents angles de pompage, l'énergie de pompe restant constante. On constate très nettement que le signal et le complémentaire ajustent spontanément leur énergie et leur vecteur d'onde pour que les règles de conservation soient respectées. Ceci confirme avec certitude que le mécanisme est paramétrique, par opposition à un processus de diffusion linéaire de type Rayleigh.

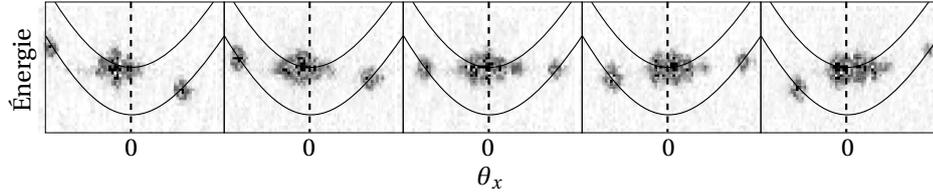


FIGURE 3.13 – Collection d’images  $(E, k)$  de l’émission d’un fil, pompé pour différents angles à proximité de l’incidence normale, à énergie constante. Le signal et le complémentaire (à gauche et à droite de la pompe) suivent la dispersion de la sous-branch  $0_{\perp}$ . La ligne en pointillés repère l’incidence normale, les deux courbes en traits pleins repèrent les sous-branches  $0_{//}$  et  $0_{\perp}$ .

### 3.5.5 Images dans le plan de Fourier

Dans le plan de Fourier, où on visualise l’émission résolue en vecteurs d’onde, le signal et le complémentaire correspondent à deux taches allongées dans la direction  $k_y$  perpendiculaire au fil, comme l’illustre la figure 3.14. La largeur en  $k_y$  de la tache correspond à la largeur du lobe central du diagramme d’émission du mode  $j = 0$ . La largeur en  $k_x$  est quant à elle liée à la largeur spectrale de la raie. Sur la figure 3.14, la tache centrale, structurée, correspond au laser de pompe, dont une partie de la lumière n’est pas bloquée par le polariseur croisé. Les longues lignes dans la direction  $k_y$  qui composent cette tache sont vraisemblablement dues à la diffraction du spot laser sur les bords du fil. Ces lignes sont stoppées sur l’image par l’ouverture numérique finie du dispositif de visualisation, qui ne permet que de visualiser l’émission entre  $-20^\circ$  et  $+20^\circ$ .

### 3.5.6 Processus supplémentaires

En fonction du désaccord exciton-cavité, ou en fonction de la taille du fil, d’autres mécanismes horizontaux peuvent être accessibles, en plus du processus  $(0_{//}, k_x = 0)^2 \rightarrow (0_{\perp}, k_x = q) \times (0_{\perp}, k_x = -q)$ . En effet, si le splitting en polarisation devient plus grand que l’écart entre les branches d’indices  $j$  successifs, on peut observer les mécanismes  $(0_{//}, k_x = 0)^2 \rightarrow (j_{\perp}, k_x = q) \times (j_{\perp}, k_x = -q)$ , avec  $j > 0$ . La figure 3.15 reproduit un exemple d’émission multiple où l’oscillation apparaît sur des branches supplémentaires, en plus de la branche  $0_{\perp}$ .

## 3.6 Étude en puissance de l’OPO

Nous avons clairement mis en évidence l’existence de processus paramétriques horizontaux dans nos échantillons de fils photoniques, qui respectent notamment la conservation de l’énergie et du vecteur d’onde. Confrontons maintenant le comportement en puissance avec un modèle simple d’interaction paramétrique dans les microcavités, et étudions l’influence des paramètres expérimentaux sur l’efficacité du phénomène.

La figure 3.16 reproduit l’intensité du signal et du complémentaire pour l’oscillation paramétrique dans un fil de  $3 \mu\text{m}$ , en pompant à une énergie de  $-10 \text{ meV}$  sous

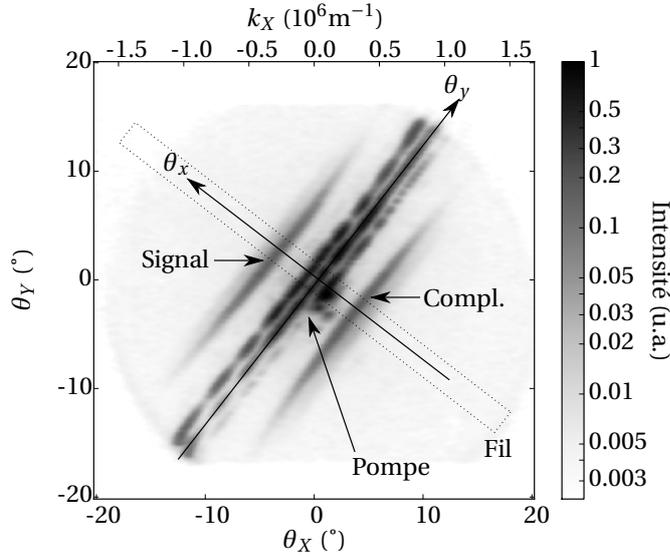


FIGURE 3.14 – Émission de l'échantillon visualisée dans le plan de Fourier. Les angles  $\theta_X$  et  $\theta_Y$  correspondent à l'horizontale et à la verticale dans l'expérience, les angles  $\theta_x$  et  $\theta_y$  sont les angles dans les plans parallèles et perpendiculaire au fil. En pointillés on a représenté la direction du fil, pour référence.

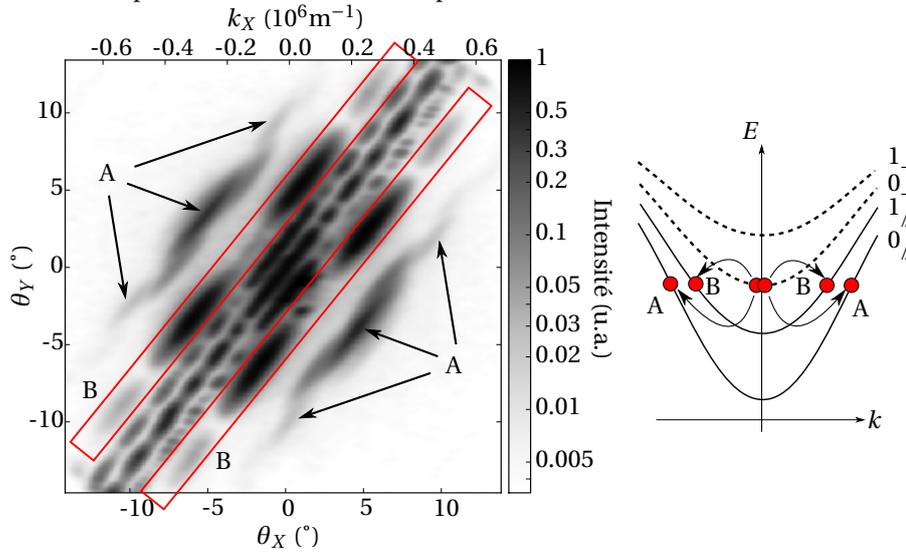


FIGURE 3.15 – Émission de l'échantillon visualisée dans le plan de Fourier, dans un fil de  $6 \mu\text{m}$  d'épaisseur. On pompe à une énergie  $\approx 5 \text{ meV}$  sous l'exciton, à  $40 \text{ mW}$ . L'oscillation paramétrique est multiple. On dénombre au moins deux mécanismes, que l'on identifie grâce aux nombres de lobes d'émission dans l'axe  $k_y$  : le processus A correspond à  $(0_{\parallel}, k_x = 0)^2 \rightarrow (0_{\perp}, k_x = q_0) \times (0_{\perp}, k_x = -q_0)$ , tandis que le processus B correspond à  $(0_{\parallel}, k_x = 0)^2 \rightarrow (1_{\perp}, k_x = q_1) \times (1_{\perp}, k_x = -q_1)$ . Les trois formes régulièrement tâchetées au centre l'image sont attribuables à la diffraction du spot de pompe sur les bords du fil.

l'exciton. Les intensités ont été mesurées avec des photodiodes, préalablement calibrées. On note l'apparition du signal et du complémentaire à partir d'un seuil sur la puissance de pompe  $P_0 = 40.0$  mW. En-dessous du seuil, le gain paramétrique est trop faible pour compenser les pertes du système (absorption et miroirs de transmittivité non-nulle). À partir de  $P_0$ , le gain paramétrique compense les pertes, et l'oscillation apparaît.

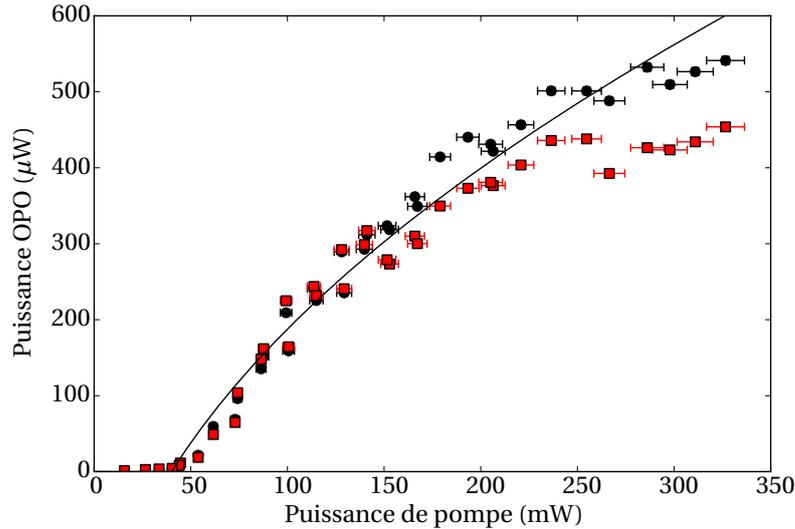


FIGURE 3.16 – Intensités du signal et du complémentaire en fonction de la puissance de pompe, dans un fil de  $3 \mu\text{m}$ . La pompe est située 10 meV sous l'exciton. Les ronds noirs et les carrés rouges correspondent respectivement au signal et au complémentaire. La ligne en trait plein est un fit de la forme  $\alpha(\sqrt{P_p} - \sqrt{P_0})$  (voir équation 3.31), avec  $P_0 = 40.0$  mW.

On note que les intensités du signal et du complémentaire sont à peu près équilibrées (10% d'écart maximum en dessous de 200 mW). Ceci correspond à la représentation corpusculaire dans laquelle deux polaritons de pompe sont diffusés en deux polaritons, signal et complémentaire, produisant ainsi autant de polaritons d'un type que de l'autre. Comme le signal et le complémentaire sont ici à la même énergie, ils ont aussi les mêmes composantes exciton et photon, et les intensités sortantes sont donc proches. Les puissances de sortie dépassent  $500 \mu\text{W}$ , et étant donné la longueur d'onde (775 nm), les deux faisceaux sont très largement visibles à l'oeil nu. Ceci constitue un résultat très satisfaisant.

### 3.6.1 Modèle de polaritons en interaction

Un modèle simple d'interaction entre polaritons permet de justifier ce comportement en puissance. CIUTI *et al.* [22] [23] ont étudié l'oscillation paramétrique dans une microcavité planaire en couplage fort à partir d'un modèle quantique. WHITTAKER [24] a analysé le problème du point de vue classique d'un système d'oscillateurs couplés, où l'exciton est décrit comme un oscillateur non-linéaire, et obtient des résultats similaires. Nous (D. TAJ, T. LECOMTE, C. DIEDERICHS, PH. ROUSSIGNOL, C. DELALANDE ET J. TIGNON [25]) avons montré que même en régime de couplage

faible ces résultats sur le comportement en puissance de l'OPO étaient encore variables.

Dans les fils photoniques, puisque nous avons montré plus haut que les modes de polaritons se comportent tout à fait comme des modes de cavité individuellement couplés à l'exciton, nous nous attendons à pouvoir utiliser le même formalisme que celui des cavités planaires. Ici nous reprendrons le raisonnement aboutissant à l'expression des intensités du signal et du complémentaire en régime d'oscillation, déjà largement abordé dans les références citées, ainsi que dans plusieurs manuscrits de thèse. On se basera notamment sur la démarche exposée dans la référence [20], en l'adaptant au cas de l'oscillation dégénérée.

Le système est décrit par un hamiltonien  $H = H_0 + H_{int}$ , où  $H_0$  décrit l'évolution libre tandis que  $H_{int}$  décrit l'interaction entre polaritons (établi à partir de 1.58) :

$$H_0 = \sum_k E_P(k) p_k^\dagger p_k \quad (3.15)$$

$$H_{int} = \frac{1}{2} \sum_{k,k',q} V_{k,k',q} p_{k+q}^\dagger p_{k'-q}^\dagger p_k p_{k'} \quad (3.16)$$

Les  $p_k^\dagger$  sont les opérateurs de création de polaritons.  $k$  permet d'identifier le mode de polaritons, il inclut donc non-seulement le vecteur d'onde, mais aussi l'indice  $j$  de la branche, et la polarisation  $\perp$  ou  $\parallel$  de la sous-branche.  $E_P(k)$  est l'énergie du mode repéré par  $k$ .  $V_{k,k',q}$  est le potentiel d'interaction entre polariton, qui se compose de deux termes, décrivant respectivement les interactions excitoniques et la saturation du couplage exciton-photon :

$$V_{k,k',q} = V_0 X_{k+q} X_{k'-q} X_{k'} X_k + 2V_{sat} (X_{k+q} X_{k'-q} C_k X_{k'} + C_{k+q} X_{k'-q} X_{k'} X_k) \quad (3.17)$$

Dans notre problème, on énumère trois modes participants au processus, qu'on repèrera par  $k_p$ ,  $k_s$  et  $k_c$  respectivement pour la pompe, le signal et le complémentaire.  $H_{int}$  décrit toutes les interactions possibles entre ces modes. On ne retiendra que celles qui font intervenir au moins deux fois  $p_{k_p}$ , ce qui est valable tant que le signal et le complémentaire sont faibles, c'est-à-dire tant que la puissance de pompe n'est pas trop élevée au-dessus du seuil. On évite ainsi les processus de diffusion multiples.

De plus,  $V_{k,k',q}$  dépend de la position des modes par l'intermédiaire des coefficients de Hopfield, qui eux-mêmes ne dépendent que de l'écart entre l'énergie du polariton et celle de l'exciton. Comme on se concentre sur les processus horizontaux où tous les modes participants sont à la même énergie, il n'y a qu'un seul  $V_{k,k',q}$  impliqué, qu'on notera seulement  $V(E)$ .

À partir de l'hamiltonien  $H$ , on peut écrire les équations de Heisenberg qui décrivent l'évolution des opérateurs de polaritons. Au préalable, on définit les opérateurs lentement variables, où on a noté  $\tilde{E}_{p,s,c}$  les énergies des polaritons impliqués ( $\tilde{E}_p$  est en particulier l'énergie du laser de pompe) :

$$\tilde{p}_{p,s,c}(t) = p_{p,s,c}(t) e^{i\tilde{E}_{p,s,c}t/\hbar} \quad (3.18)$$

Dans le cadre de l'approximation séculaire, qui décrit la conservation d'énergie durant le processus paramétrique ( $\Delta\tilde{E} = \tilde{E}_s + \tilde{E}_c - 2\tilde{E}_p = 0$ ), on obtient le système diffé-

rentiel suivant :

$$\frac{d\tilde{p}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \left( \Delta_s + 2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_p \right) \tilde{p}_s - \frac{i}{\hbar} V(E)\tilde{p}_c^\dagger\tilde{p}_p^2 - \gamma_s\tilde{p}_s + P_s^{in} \quad (3.19a)$$

$$\frac{d\tilde{p}_c}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \left( \Delta_c + 2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_p \right) \tilde{p}_c - \frac{i}{\hbar} V(E)\tilde{p}_s^\dagger\tilde{p}_p^2 - \gamma_c\tilde{p}_c + P_c^{in} \quad (3.19b)$$

$$\frac{d\tilde{p}_p}{dt} = -\frac{i}{\hbar} \left( \Delta_p + 2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_p \right) \tilde{p}_p - \frac{i}{\hbar} 2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_s\tilde{p}_c - \gamma_p\tilde{p}_p + P_p^{in} \quad (3.19c)$$

On a introduit ici les largeurs de raies de polaritons  $\gamma_{p,s,c}$  (HWHM), des termes de pompage  $P_k^{in}$ , et les désaccords  $\Delta_{p,s,c} = E_p(k_{p,s,c}) - \tilde{E}_{p,s,c}$  qui correspond à l'écart entre l'énergie des modes nus et l'énergie des polaritons.

Expérimentalement, on accorde à chaque puissance l'énergie de la pompe pour exciter en résonance. Ainsi  $\Delta_p$  compense exactement le blueshift venant du terme  $2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_p$ . De plus, les éventuels faisceaux signal et complémentaire vont être produits spontanément dans la configuration qui minimise l'intensité de seuil, ce qui fixe les valeurs de  $\Delta_s$  et  $\Delta_c$  pour compenser également leurs blueshifts respectifs. Le système se simplifie :

$$\frac{d\tilde{p}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar} V(E)\tilde{p}_c^\dagger\tilde{p}_p^2 - \gamma_s\tilde{p}_s + P_s^{in} \quad (3.20a)$$

$$\frac{d\tilde{p}_c}{dt} = -\frac{i}{\hbar} V(E)\tilde{p}_s^\dagger\tilde{p}_p^2 - \gamma_c\tilde{p}_c + P_c^{in} \quad (3.20b)$$

$$\frac{d\tilde{p}_p}{dt} = -\frac{i}{\hbar} 2V(E)\tilde{p}_p^\dagger\tilde{p}_s\tilde{p}_c - \gamma_p\tilde{p}_p + P_p^{in} \quad (3.20c)$$

Étudions les solutions stationnaires  $\bar{p}_k$ . Puisqu'on excite le système avec une seule pompe,  $\bar{P}_s^{in} = \bar{P}_c^{in} = 0$ . Le système s'écrit :

$$0 = -\frac{i}{\hbar} V(E)\bar{p}_c^*\bar{p}_p^2 - \gamma_s\bar{p}_s \quad (3.21a)$$

$$0 = -\frac{i}{\hbar} V(E)\bar{p}_s^*\bar{p}_p^2 - \gamma_c\bar{p}_c \quad (3.21b)$$

$$0 = -\frac{i}{\hbar} 2V(E)\bar{p}_p^*\bar{p}_s\bar{p}_c - \gamma_p\bar{p}_p + \bar{P}_p^{in} \quad (3.21c)$$

Pour que des solutions existent, le déterminant des deux premières équations doit être nul, ce qui donne la condition pour la population de polaritons de pompe  $|\bar{p}_p|^2$  au seuil d'oscillation :

$$\gamma_s\gamma_c - (V/\hbar)^2 |\bar{p}_{p,seuil}|^4 = 0 \quad (3.22)$$

$$\Leftrightarrow |\bar{p}_{p,seuil}|^2 = \frac{\sqrt{\gamma_s\gamma_c}}{(V/\hbar)} \quad (3.23)$$

Au niveau du seuil, on peut négliger le premier terme dans l'équation 3.21c, qui donne alors la relation entre la population des polaritons de pompe et le terme de pompage :

$$|\bar{P}_{p,seuil}^{in}|^2 = \gamma_p^2 |\bar{p}_{p,seuil}|^2 \quad (3.24)$$

Dans l'approximation du quasi-mode [26], le terme de pompage est lié à l'amplitude  $\mathcal{A}_p^{in}$  du champ laser de pompe par l'intermédiaire de largeur du mode de

cavité  $\gamma_C$  :

$$\bar{P}_{p,seuil}^{in} = C_p \sqrt{2\gamma_C} \mathcal{A}_{p,seuil}^{in} \quad (3.25)$$

Pour l'intensité du champ laser de pompe  $I_p^{in} = |\mathcal{A}_p^{in}|^2$  au seuil, on obtient donc :

$$I_{p,seuil}^{in} = \frac{\gamma_p^2 \sqrt{\gamma_s \gamma_c}}{C_p^2 2\gamma_C (V/\hbar)} \quad (3.26)$$

Cette équation 3.26 constitue un résultat intéressant, qui permet de discuter de la variation de la dépendance du seuil avec les paramètres expérimentaux. Nous étudierons un peu plus loin (partie 3.6.2) comment le seuil varie avec le désaccord. Notons tout de suite que le seuil est d'autant plus bas que les largeurs  $\gamma_p$ ,  $\gamma_s$  et  $\gamma_c$  sont petites, et que le potentiel d'interaction  $V$  est grand. Pour que le seuil soit petit, il faut également que la pompe soit bien couplée avec le système, ce qui correspond à un coefficient  $C_p^2$  grand, et une largeur de cavité  $\gamma_C$  grande.

Les populations du signal et du complémentaire sont donnés par l'équation 3.21c :

$$|\bar{p}_s|^2 = \frac{\gamma_p}{2(V/\hbar)} \sqrt{\frac{\gamma_c}{\gamma_s}} \frac{\sqrt{I_p^{in}} - \sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}{\sqrt{I_{p,seuil}^{in}}} \quad (3.27)$$

$$|\bar{p}_c|^2 = \frac{\gamma_p}{2(V/\hbar)} \sqrt{\frac{\gamma_s}{\gamma_c}} \frac{\sqrt{I_p^{in}} - \sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}{\sqrt{I_{p,seuil}^{in}}} \quad (3.28)$$

Une fois de plus, dans l'approximation du quasi-mode [26], on peut relier ces populations aux champs lumineux sortants ( $I_k^{out} = 2\gamma_C C_k^2 |\bar{p}_k|^2$ ) :

$$I_s^{out} = \frac{\gamma_C C_s^2 \gamma_p}{(V/\hbar)} \sqrt{\frac{\gamma_c}{\gamma_s}} \left( \frac{\sqrt{I_p^{in}} - \sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}{\sqrt{I_{p,seuil}^{in}}} \right) \quad (3.29)$$

$$I_c^{out} = \frac{\gamma_C C_c^2 \gamma_p}{(V/\hbar)} \sqrt{\frac{\gamma_s}{\gamma_c}} \left( \frac{\sqrt{I_p^{in}} - \sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}{\sqrt{I_{p,seuil}^{in}}} \right) \quad (3.30)$$

En particulier, dans ce modèle les puissances  $P_s$  et  $P_c$  du signal et du complémentaire se comportent comme :

$$P_{s,c} \propto \sqrt{P_p} - \sqrt{P_0} \quad (3.31)$$

où  $P_p$  désigne la puissance de pompe et  $P_0$  la puissance de seuil.

Expérimentalement, c'est exactement le comportement que l'on observe. Effectivement, la figure 3.16 montre un fit avec une fonction de la forme  $\sqrt{P_p} - \sqrt{P_0}$ , qui reproduit de manière très satisfaisante les données expérimentales, avec  $P_0 = 40.0$  mW. De plus, comme le processus est dégénéré en énergie, le signal et le complémentaire partagent les mêmes largeurs de raie ( $\gamma_s = \gamma_c$ ) et les mêmes coefficients de Hopfield ( $C_s = C_c$ ) dans les équations 3.29, donc le signal et le complémentaire sont effectivement de même intensité. Nous partons donc sur un modèle qui reproduit correctement le comportement en puissance. Nous discuterons des équations 3.29 dans le paragraphe suivant.

### 3.6.2 Étude en fonction du désaccord

Nous avons étudié expérimentalement la dépendance du seuil de l'oscillation paramétrique avec le désaccord polariton-exciton. Appliquons la formule 3.26 qui définit l'intensité de seuil au cas particulier du processus horizontal, dégénéré en énergie. Puisque les trois modes polaritoniques considérés sont à la même énergie, ils sont aussi à la même distance énergétique du mode excitonique non couplé, et ils ont donc les mêmes coefficients de Hopfield :  $C_p = C_s = C_c = C$  et  $X_p = X_s = X_c = X$ . On supposera que les largeurs sont toutes les mêmes :  $\gamma_p = \gamma_s = \gamma_c = \gamma_C C^2 + \gamma_X X^2$ . Et enfin, le potentiel d'interaction (défini en 3.17) s'écrit :  $V = V_0 X^4 + 4V_{sat} C X^3$ . L'intensité de seuil dépend donc du désaccord polariton-exciton par l'intermédiaire des coefficients de Hopfield selon l'expression suivante :

$$I_{p,seuil}^{in} = \frac{\hbar(\gamma_C C^2 + \gamma_X X^2)^3}{C^2 2\gamma_C (V_0 X^4 + 4V_{sat} C X^3)} \quad (3.32)$$

La variation de l'intensité  $I_{p,seuil}^{in}$  avec l'énergie dépend de cinq paramètres : les largeurs de raies  $\gamma_C$  et  $\gamma_X$  de la cavité et de l'exciton, les potentiels  $V_0$  et  $V_{sat}$  d'interaction entre polaritons et de saturation, et le splitting de Rabi  $\Omega$ , qui apparaît dans les coefficients de Hopfield  $X$  et  $C$ . Le splitting de Rabi agit comme un facteur d'échelle sur l'écart d'énergie entre le polariton et l'exciton. D'après les caractéristiques de nos fils, on estime  $V_{sat}/V_0 \approx 0.04$  [27], et  $V_0$  agit alors comme un facteur d'échelle sur l'intensité de seuil. Enfin, l'influence des paramètres  $\gamma_C$  et  $\gamma_X$  est illustrée sur la figure 3.17. On note que la largeur de cavité  $\gamma_C$  n'influence que peu le seuil minimal en fonction du désaccord ; par contre plus  $\gamma_C$  est petit, plus la courbe de seuil s'élargit : ainsi, avec un  $\gamma_C$  petit, on obtient un seuil petit sur une grande gamme de désaccord. La largeur de l'exciton  $\gamma_X$  joue un grand rôle dans l'intensité de seuil : le seuil minimal augmente de 2 ordres de grandeurs environ quand  $\gamma_X$  augmente d'un ordre de grandeur, de 0.2 meV à 2 meV. Dans tous les cas, le seuil se situe à un désaccord dont l'ordre de grandeur est le splitting de Rabi :  $(E_p - E_X)_{seuil} \sim \Omega$ .

La figure 3.18 reproduit nos résultats expérimentaux de la mesure de la puissance de pompe au seuil d'oscillation, en fonction de l'écart d'énergie  $E_p - E_X$  entre la pompe et l'exciton. On observe une augmentation exponentielle de la puissance de seuil quand on s'éloigne de l'exciton. Pour des désaccords inférieurs à -16 meV, le seuil devient plus grand que la puissance accessible dans notre montage expérimental ( $\approx 300$  mW). Pour des désaccords plus grands que -4 meV environ, l'oscillation n'est plus visible, parce que les intensités des faisceaux signal et complémentaire sont trop faibles et masquées par d'autres processus, comme la diffusion incohérente.

Sur la figure, nous avons représenté plusieurs applications numériques de l'équation 3.32 définissant l'évolution de  $I_{p,seuil}^{in}$ . La courbe en tirets rouges correspond aux paramètres déduits de la mesure des largeurs de raies, décrite dans la section 3.4.3, où on avait obtenu  $\Omega \approx 5$  meV,  $\gamma_X \approx 1$  meV et  $\gamma_C \approx 0.1$  meV. Cet ensemble de paramètres décrit assez mal les valeurs de seuil mesurées. Pour améliorer l'accord entre la formule et les données, il faut notamment considérer une largeur de raie de l'exciton beaucoup plus faible. Ainsi la courbe noire en trait plein correspond à  $\gamma_X \approx 0.1$  meV et décrit correctement la tendance des données expérimentales. Alternative-ment, on peut aussi reproduire les données en prenant un splitting de Rabi plus grand,  $\Omega \approx 10$  meV, qui correspond au splitting mesuré sur la dispersion de polaritons de la figure 3.6, mais il faut alors choisir une largeur de raies de l'exciton encore

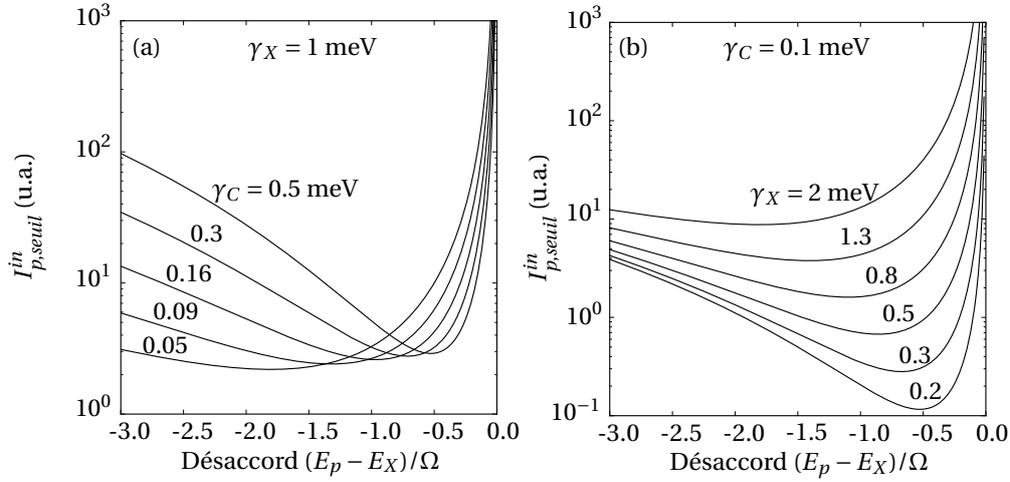


FIGURE 3.17 – (a) Intensité de seuil en fonction de l'écart d'énergie entre le polariton et l'exciton, pour différentes valeurs de la largeur de raie de cavité  $\gamma_C$ . (b) Intensité de seuil en fonction de l'écart d'énergie entre le polariton et l'exciton, pour différentes valeurs de la largeur de raie de l'exciton  $\gamma_X$ .

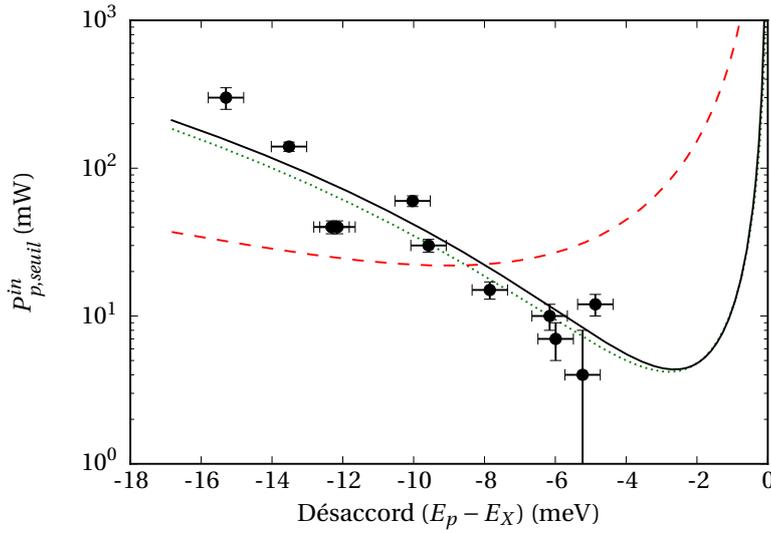


FIGURE 3.18 – Mesure du seuil d'oscillation dans une collection de fils, en fonction de l'écart d'énergie entre les polaritons et l'exciton. Les points munis de barres d'erreur sont les données expérimentales. La courbe noire en trait plein est un ajustement de la formule 3.32 pour  $I_{p,seuil}^{in}$  avec  $\Omega = 5$  meV,  $\gamma_X = 0.1$  meV et  $\gamma_C = 0.1$  meV. La courbe verte en pointillés représente la même formule, mais avec  $\Omega = 10$  meV,  $\gamma_X = 0.03$  meV et  $\gamma_C = 0.1$  meV. Enfin, la courbe rouge en tirets représente également la même formule avec  $\Omega = 5$  meV,  $\gamma_X = 1$  meV et  $\gamma_C = 0.1$  meV, plus proche de la mesure expérimentale réalisée dans la partie 3.4.3.

plus petite. Sur la courbe verte en pointillés, on a pris  $\gamma_X \approx 0.03$  meV. Globalement, on retiendra que le modèle présenté ci-dessus s'accorde correctement avec les don-

nées expérimentales si on utilise une largeur de raies pour les excitons nettement inférieure au 2 meV que nous avons obtenu en mesurant les largeurs de raie. Il est probable que cette distinction corresponde à l'écart entre la largeur radiative de l'exciton et sa largeur totale, incluant la largeur inhomogène. Un modèle incluant les effets d'élargissement inhomogène pourrait décrire plus précisément les mécanismes en jeu [19].

La variation de l'intensité des faisceaux signal et complémentaire avec la puissance de pompe et avec le désaccord pompe-exciton est décrite par l'équation 3.29, dont on a reproduit les résultats sur la figure 3.19. On note que l'intensité des faisceaux créés par l'OPO est globalement d'autant plus faible que le désaccord est proche de zéro. Ceci correspond à deux effets conjoints. D'abord, plus le seuil est

bas, plus la population de polariton produite l'est également, à cause du terme  $\frac{\sqrt{I_p^{in}} - \sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}{\sqrt{I_{p,seuil}^{in}}}$

dans l'expression de  $I_s^{out}$ . D'autre part, plus les modes polaritoniques impliqués sont proches de l'exciton, plus leur composante excitonique est grande, ce qui les rend moins couplés vers l'extérieur. Ceci correspond au terme  $C^2$  au numérateur des équations 3.29 et 3.30. Ceci justifie que, dans nos mesures, le signal et le complémentaire ne soient plus visibles pour des désaccords plus petits que -4 meV environ, c'est-à-dire quand on s'éloigne de l'exciton. Il y a ainsi un compromis à trouver : on peut atteindre un seuil petit, mais au prix d'intensités faibles pour le signal et le complémentaire.

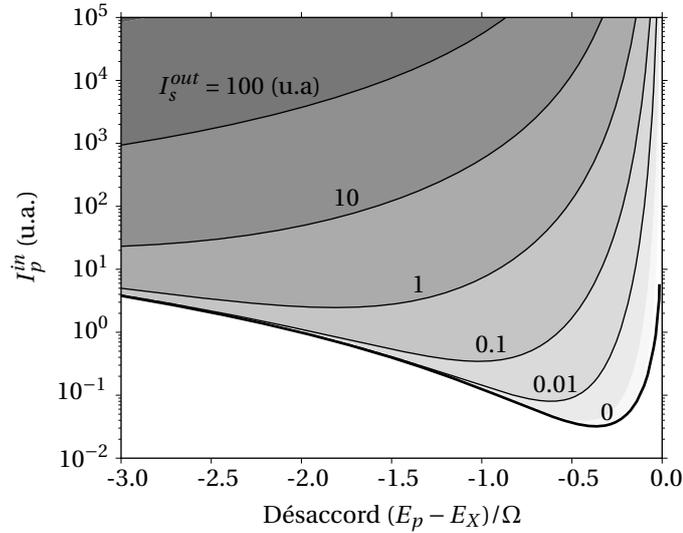


FIGURE 3.19 – Intensité du signal (égale à celle du complémentaire) selon la formule 3.29 dans un diagramme dont l'abscisse est l'écart en énergie entre la pompe et l'exciton, et l'ordonnée est l'intensité de la pompe. La ligne épaisse représente le seuil d'oscillation. Les paramètres choisis sont  $\gamma_X = 0.1$  meV et  $\gamma_C = 0.1$  meV.

### 3.6.3 Influence de la taille des fils

La taille des fils joue un rôle sur le diagramme d'émission du signal et du complémentaire. Plus le fil est étroit, plus l'émission angulaire de ces faisceaux est éten-

due. La figure 3.20 illustre cet effet sur l'émission dans le plan de Fourier de deux fils de tailles différentes. On note que dans le fil de  $6 \mu\text{m}$ , l'émission s'étend sur  $20^\circ$  seulement, tandis que dans le fil de  $3 \mu\text{m}$ , elle s'étend sur  $45^\circ$ .

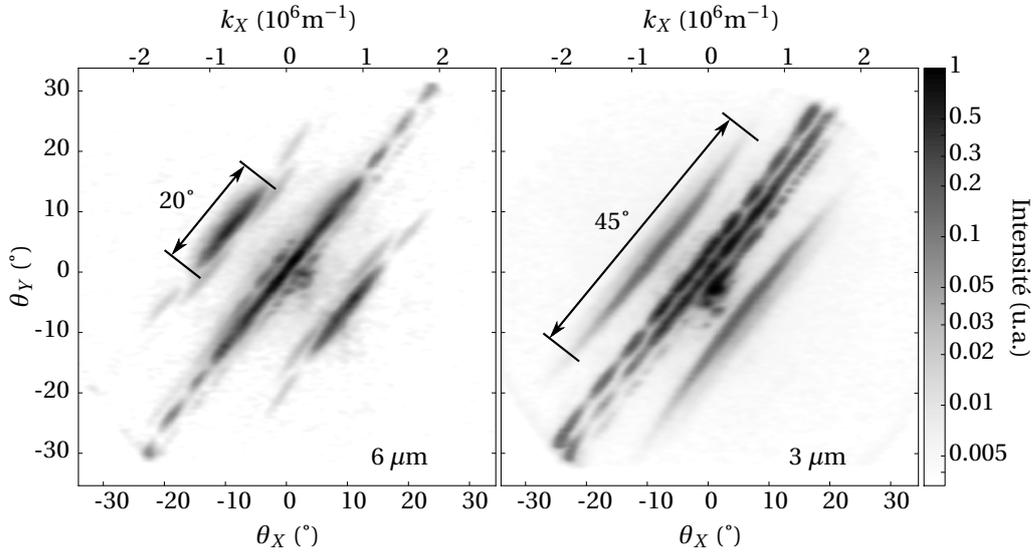


FIGURE 3.20 – Émission dans le plan de Fourier de deux fils de  $6 \mu\text{m}$  (à gauche) et de  $3 \mu\text{m}$  (à droite). Les échelles angulaires sont identiques.

En revanche, la taille des fils ne joue pas un rôle direct sur l'intensité intégrée au seuil ou sur les intensités des faisceaux OPO. La figure 3.18 présentée ci-dessus rassemble d'ailleurs des données expérimentales obtenues sur des fils de tailles différentes (3 à  $6 \mu\text{m}$ ) sans qu'on puisse extraire une tendance due aux différences de tailles.

Il semble donc que le confinement latéral joue essentiellement un rôle en participant au splitting en polarisation et en introduisant les modes  $j$  du fil. En revanche, il intervient peu dans l'interaction polariton-polariton.

### Conclusion de l'étude en puissance

L'oscillation paramétrique horizontale observée dans les fils photoniques se comporte, pour ce qui est des intensités moyennes, selon le modèle usuel d'interaction entre excitons, dans un régime de couplage fort. Les intensités produites varient comme  $\sqrt{P_p} - \sqrt{P_0}$ . L'intensité de pompe au seuil varie énormément avec le désaccord polariton-exciton : elle présente un minimum aux alentours du splitting de Rabi, augmente exponentiellement quand on s'éloigne de l'exciton. Plus près de l'exciton, les intensités produites sont trop faibles et l'oscillation n'est plus visible. Le confinement latéral des fils a une influence structurelle, mais n'intervient pas dans la description de l'interaction non-linéaire entre polaritons. Après cette étude des puissances moyennes, nous nous intéresserons dans la dernière partie de ce chapitre au propriétés des fluctuations d'intensités des faisceaux produits.

### 3.7 Mesures du bruit de photons

Parmi les propriétés intéressantes de l'oscillation paramétrique figurent les caractéristiques des fluctuations des champs signal et complémentaire, qui sont du plus grand intérêt.

Dans le premier chapitre (partie 1.6) de cette thèse, nous avons décrit les concepts des fluctuations quantiques du champ électromagnétique. Comme nous l'avons vu, le mélange à trois ondes produit des faisceaux corrélés, ou jumeaux, dont les applications sont nombreuses : mesures au-delà du bruit quantique standard, cryptographie quantique en variables continues, mesures quantiques non destructives, ou encore obtention de sources de photons uniques dits "annoncés". Dans les micro-cavités, et en particulier dans les fils photoniques, il se produit un mélange à quatre ondes, attribuable à un  $\chi^{(3)}$ . Il y a donc également création de polaritons jumeaux. Dans cette partie, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus dans les fils photoniques. Nous nous intéresserons à l'existence ou non de corrélations quantiques.

Le montage expérimental de mesure du bruit de photons et de corrélations entre faisceaux a été présentée en détail dans la partie 2.5. En particulier, la figure 2.10 présentait la façon dont on extrait et filtre spatialement les faisceaux signal et complémentaire avant de les envoyer sur les détecteurs. Les spectres de bruit sont en particulier mesurés sur une bande de fréquences comprise entre 2 et 4 MHz. Par ailleurs, on a optimisé a posteriori le bruit de la différence d'intensité en ajustant numériquement le gain sur une des voies (voir partie 2.5.4).

#### 3.7.1 Bruit des faisceaux individuels

Nous présentons tout d'abord une mesure des bruits individuels des faisceaux signal et complémentaire sur la figure 3.21, obtenue exactement dans les conditions expérimentales de la figure 3.16 qui présentait les intensités moyennes. Le bruit des faisceaux individuels semble monter de façon abrupte au niveau du seuil OPO (50 mW), en partant approximativement du bruit quantique standard, pour s'arrêter à hauteur de  $2 \times 10^3$  fois le bruit quantique standard autour de 50 mW, après quoi il reste à peu près constant. Notons que des bruits très élevés comme ceux que nous mesurons ici ont aussi été observés dans une expérience de mélange à quatre ondes dans une cavité planaire [21].

#### 3.7.2 Bruit de la différence et de la somme d'intensités

Nous présentons ensuite une mesure des bruits de la somme et de la différence des intensités sur la figure 3.22. Le bruit de la somme des intensités se comporte globalement comme les bruits individuels. On attend a priori que le bruit de la différence d'intensité soit en-dessous du bruit quantique standard si le système se comporte comme un oscillateur paramétrique idéal. On observe cependant une situation différente : le bruit de la différence semble partir du bruit quantique standard au niveau du seuil d'oscillation, puis augmente très nettement jusqu'à atteindre deux ordres de grandeur au-dessus du bruit quantique standard. À aucun moment ce bruit de différence n'est mesuré dans le régime quantique.

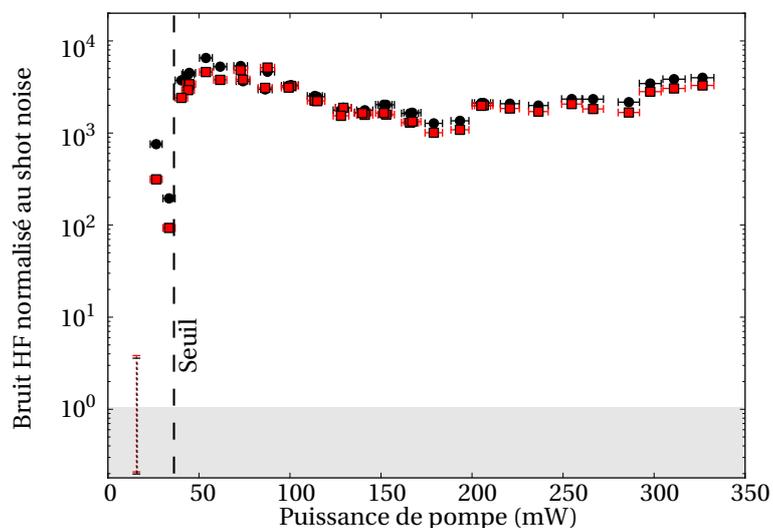


FIGURE 3.21 – Mesure de bruit sur les faisceaux individuels : signal (carrés rouges) et complémentaire (ronds noirs) en fonction de la puissance de pompe, dans les mêmes conditions expérimentales que la figure 3.16. Les points à 16 mW sont très nettement dans le bruit des instruments de mesures, on a donc représenté une grande barre d’erreur en pointillés.

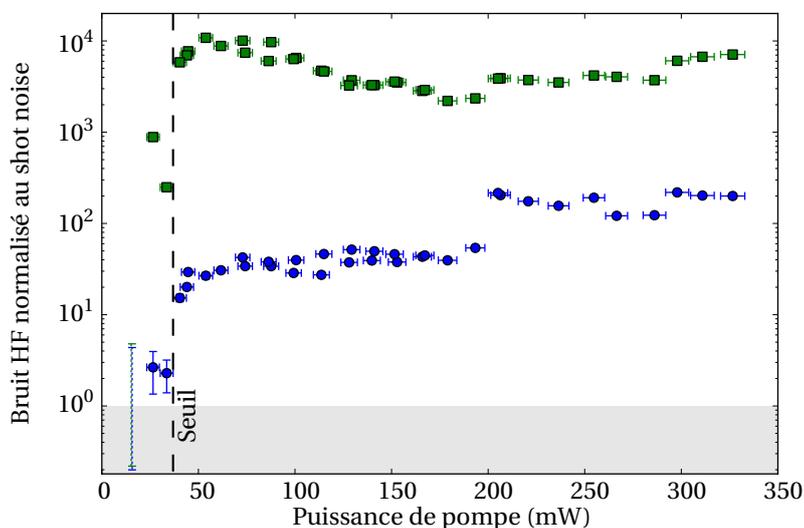


FIGURE 3.22 – Mesure de bruit de la somme (carrés verts) et de la différence (ronds bleus) en fonction de la puissance de pompe. Les conditions expérimentales sont celles de la figure 3.16. La pompe est située 10 meV sous l’exciton, dans un fil de  $3 \mu\text{m}$ . Les points à 16 mW sont très nettement dans le bruit des instruments de mesures, on a donc représenté une grande barre d’erreur en pointillés.

### 3.7.3 Taux de corrélation

Le taux de corrélation  $C$  entre le signal et le complémentaire est défini par :

$$C = \frac{S_s^{out} - S_r^{out}}{4\sqrt{S_{\alpha_s}^{out} S_{\beta_c}^{out}}} \quad (3.33)$$

On a représenté ce taux de corrélation sur la figure 3.23, pour la même série de mesure que précédemment. Ce taux de corrélation est plus grand que 0.97, ce qui correspond à une très forte corrélation entre les intensités. Notons néanmoins que cette grandeur n'indique pas que le système est dans un régime quantique, seule la valeur du bruit de la différence d'intensités peut l'indiquer (en passant sous le bruit quantique standard).

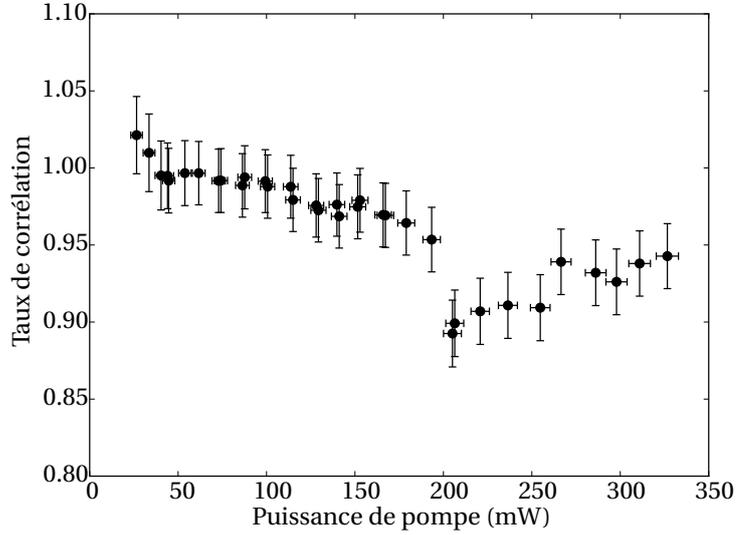


FIGURE 3.23 – Mesure du taux de corrélation entre les faisceaux signal et complémentaire en fonction de la puissance de pompe, dans les mêmes conditions expérimentales que la figure 3.16.

### 3.7.4 Modèle de fluctuations

Pour interpréter les mesures de bruit réalisées sur les fils photoniques, nous établissons maintenant les résultats en termes de bruit du modèle de polaritons en interaction que l'on a établi précédemment, notamment dans le système d'équations 3.19. Cette fois-ci, on ne s'intéresse plus seulement aux valeurs moyennes, mais aussi et surtout aux fluctuations des opérateurs de polaritons. On écrit donc chaque grandeur  $G$  comme la somme de la valeur moyenne et des fluctuations autour de cette moyenne :  $G = \bar{G} + \delta G$ . On linéarise le système au premier ordre par rapport aux fluctuations, et on utilise les résultats trouvés précédemment pour les valeurs moyennes, ce qui donne<sup>5</sup> :

5. Notons qu'un certain nombre de termes manquent dans la référence [20] en comparaison du système 3.34.

$$\frac{d\delta p_s}{dt} = -\frac{iV}{\hbar} \left( 2\bar{p}_s (\bar{p}_p^\dagger \delta p_p + \bar{p}_p \delta p_p^\dagger) + 2\bar{p}_c^\dagger \bar{p}_p \delta p_p^\dagger + \bar{p}_p^2 \delta p_c^\dagger \right) - \gamma_s \delta p_s + \delta P_s^{in} \quad (3.34a)$$

$$\frac{d\delta p_c}{dt} = -\frac{iV}{\hbar} \left( 2\bar{p}_c (\bar{p}_p^\dagger \delta p_p + \bar{p}_p \delta p_p^\dagger) + 2\bar{p}_s^\dagger \bar{p}_p \delta p_p^\dagger + \bar{p}_p^2 \delta p_s^\dagger \right) - \gamma_c \delta p_c + \delta P_c^{in} \quad (3.34b)$$

$$\frac{d\delta p_p}{dt} = -\frac{i2V}{\hbar} \left( |\bar{p}_p|^2 \delta p_p + \bar{p}_p^2 \delta p_p^\dagger + \bar{p}_p^\dagger \bar{p}_s \delta p_c + \bar{p}_p^\dagger \bar{p}_c \delta p_s + \bar{p}_s \bar{p}_c \delta p_p^\dagger \right) - \gamma_p \delta p_p + \delta P_p^{in} \quad (3.34c)$$

### Résolution matricielle

Le système, comprenant les trois équations ci-dessus et leurs complexes conjuguées, peut s'écrire de façon matricielle :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \delta p_s \\ \delta p_s^\dagger \\ \delta p_c \\ \delta p_c^\dagger \\ \delta p_p \\ \delta p_p^\dagger \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} \delta p_s \\ \delta p_s^\dagger \\ \delta p_c \\ \delta p_c^\dagger \\ \delta p_p \\ \delta p_p^\dagger \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \delta P_s^{in} \\ \delta P_s^{in\dagger} \\ \delta P_c^{in} \\ \delta P_c^{in\dagger} \\ \delta P_p^{in} \\ \delta P_p^{in\dagger} \end{pmatrix} \quad (3.35)$$

où la matrice  $M$  est définie par :

$$M = \begin{pmatrix} -\gamma_s & 0 & 0 & \frac{-iV}{\hbar} \bar{p}_p^2 & \frac{-2iV}{\hbar} \bar{p}_s \bar{p}_p^\dagger & \frac{-2iV}{\hbar} (\bar{p}_s + \bar{p}_c^\dagger) \bar{p}_p \\ 0 & -\gamma_s & \frac{iV}{\hbar} \bar{p}_p^{\dagger 2} & 0 & \frac{2iV}{\hbar} (\bar{p}_s^\dagger + \bar{p}_c) \bar{p}_p^\dagger & \frac{2iV}{\hbar} \bar{p}_s^\dagger \bar{p}_p \\ 0 & \frac{-iV}{\hbar} \bar{p}_p^2 & -\gamma_c & 0 & \frac{-2iV}{\hbar} \bar{p}_c \bar{p}_p^\dagger & \frac{-2iV}{\hbar} (\bar{p}_c + \bar{p}_s^\dagger) \bar{p}_p \\ \frac{iV}{\hbar} \bar{p}_p^{\dagger 2} & 0 & 0 & -\gamma_c & \frac{2iV}{\hbar} (\bar{p}_c^\dagger + \bar{p}_s) \bar{p}_p^\dagger & \frac{2iV}{\hbar} \bar{p}_c^\dagger \bar{p}_p \\ \frac{-2iV}{\hbar} \bar{p}_p^\dagger \bar{p}_c & 0 & \frac{-2iV}{\hbar} \bar{p}_p^\dagger \bar{p}_s & 0 & -\gamma_p - \frac{2iV}{\hbar} |\bar{p}_p|^2 & \frac{-2iV}{\hbar} (\bar{p}_p^2 + \bar{p}_s \bar{p}_c) \\ 0 & \frac{2iV}{\hbar} \bar{p}_p \bar{p}_c^\dagger & 0 & \frac{2iV}{\hbar} \bar{p}_p \bar{p}_s^\dagger & \frac{2iV}{\hbar} (\bar{p}_p^{\dagger 2} + \bar{p}_s^\dagger \bar{p}_c^\dagger) & -\gamma_p + \frac{2iV}{\hbar} |\bar{p}_p|^2 \end{pmatrix} \quad (3.36)$$

### Rôles du potentiel $V$ , du désaccord polaritons-exciton

Dans la matrice  $M$ , chaque fois que le potentiel d'interaction  $V$  apparaît, il est multiplié par un produit de deux moyennes d'opérateurs de polaritons. Or, on a trouvé plus haut que chacune de ces moyennes est proportionnelle à  $\sqrt{\frac{1}{V}}$ . On en conclut que les fluctuations *ne dépendent pas* du potentiel d'interaction  $V$ .

En conséquence, si les fluctuations dépendent du désaccord polariton-exciton, ce n'est que par l'intermédiaire des largeurs de raies  $\gamma_s$ ,  $\gamma_c$  et  $\gamma_p$ .

### Quadratures d'amplitude

Notre objectif est de trouver l'expression des fluctuations que l'on est capable de mesurer expérimentalement, c'est-à-dire des fluctuations de l'intensité  $I_s^{out}$  du signal, de l'intensité  $I_c^{out}$  du complémentaire, de la différence d'intensité  $I_- = I_s^{out} - I_c^{out}$ , ainsi que de la somme  $I_+ = I_s^{out} + I_c^{out}$ . Dans le cas équilibré ( $I_s^{out} = I_c^{out}$ ), les

fluctuations sur  $I_-$  et  $I_+$  sont proportionnelles aux fluctuations de la différence et la somme des amplitudes des champs, respectivement. Revenons aux valeurs moyennes pour déterminer quelles sont les quadratures d'amplitude du signal et du complémentaire. Le système 3.21 fixe les deux relations suivantes sur les phases moyennes  $\phi_p^{in}$ ,  $\phi_p$ ,  $\phi_s$  et  $\phi_c$ , respectivement du champ de pompe entrant, de la pompe, du signal et du complémentaire :

$$\phi_p^{in} = \phi_p \quad (3.37)$$

$$\phi_s + \phi_c = -\frac{\pi}{2} + 2\phi_p \quad (3.38)$$

On choisira  $\phi_p$  comme référence des phases :  $\phi_p^{in} = \phi_p = 0$ . La somme  $\phi_s + \phi_c$  est alors fixée, mais la différence  $\phi_s - \phi_c$  est libre d'évoluer (d'ailleurs ses fluctuations divergent au seuil [28]). On choisira dans la suite  $\phi_s = 0$  ( $\bar{p}_s$  réel), ce qui fixe  $\phi_c = -\frac{\pi}{2}$  ( $\bar{p}_c$  imaginaire pur). Ainsi, la quadrature d'amplitude  $\alpha_s$  du signal est la partie réelle du champ signal, tandis que la quadrature d'amplitude  $\alpha_c$  du complémentaire est la partie imaginaire du champ complémentaire.

On résoudra le système 3.34 dans la base des parties réelles  $\alpha_k$  et imaginaires  $\beta_k$  des populations de polaritons. On définit de même les parties réelles des champs *in* en entrée et *out* en sortie.

$$\alpha_k = \frac{1}{2}(\delta p_k + \delta p_k^\dagger) \quad (3.39a)$$

$$\beta_k = \frac{1}{2i}(\delta p_k - \delta p_k^\dagger) \quad (3.39b)$$

On réalise alors un changement de base (depuis la base des fluctuations complexes des champs vers la base des fluctuations sur les axes réels et imaginaires) puis une transformée de Fourier. Les détails du calcul sont présentés dans l'annexe D. Ceci permet de résoudre le système d'équations pour les quadratures, dans le domaine fréquentiel. Dans la suite, on présentera les résultats obtenus en réalisant le calcul numériquement.

### Fluctuations des champs sortants

On s'intéresse particulièrement à  $\delta\alpha_s$  et  $\delta\beta_c$ , qui sont les fluctuations d'amplitude pour le signal et le complémentaire. On s'intéresse aussi aux fluctuations sur la différence et la somme des amplitudes, qu'on étudiera grâce aux variables  $r$  pour la différence<sup>6</sup> et  $s$  pour la somme :

$$r = \frac{1}{\sqrt{2}}(\delta\alpha_s + \delta\beta_c) \quad (3.40a)$$

$$s = \frac{1}{\sqrt{2}}(\delta\alpha_s - \delta\beta_c) \quad (3.40b)$$

Jusqu'ici, les fluctuations que nous avons calculées sont celles de grandeurs internes à la microcavité. Il faut utiliser les relations entrées-sortie sur les champs lumineux pour obtenir les fluctuations sortantes (*out*), à l'extérieur de la cavité :

$$A_k^{out}(\omega) = \sqrt{2\gamma_C} A_k(\omega) - A_k^{in}(\omega) \quad (3.41)$$

6. le signe + dans  $r$  vient de la phase  $\phi_c = -\frac{\pi}{2}$  du complémentaire.

Dans cette relation entrée-sortie, on reliera chaque champ lumineux  $A_k$  au champ de polariton  $p_k$  par le coefficient de Hopfield  $C_k$  :

$$A_k(\omega) = -C_k p_k(\omega) \quad (3.42)$$

Enfin, les spectres de bruit sont les variances des fluctuations (selon la relation 1.81) :

$$S_{A_k}(\omega) = \langle (\delta A_k)^2 \rangle \quad (3.43)$$

Ainsi, les spectres de bruit des champs sortants sont reliés à ceux des champs entrants. On distingue différentes contributions aux fluctuations entrantes : on supposera que le champ entrant pour le laser de pompe est un champ cohérent et que les champs lumineux entrants pour le signal et le complémentaire sont le vide quantique. Tous ces champs sont donc au *shot noise*, et indépendants les uns des autres (ce qui définit un produit scalaire, utile pour la résolution matricielle) :

$$\langle A_k^{in}(\omega) A_{k'}^{in}(-\omega) \rangle = \delta_{k,k'} \quad (3.44)$$

En ce qui concerne les excitons, on distinguera deux cas : le cas idéal, pour lequel, les excitons n'introduisent pas non plus de bruit :

$$\langle X_k^{in}(\omega) X_{k'}^{in}(-\omega) \rangle = \delta_{k,k'} \quad (3.45)$$

et le cas réel, pour lequel on supposera qu'il y a un excès de bruit sur la quadrature d'amplitude des excitons.

De plus, dans le cas idéal les largeurs de raies du signal et du complémentaire sont rigoureusement identiques, ce qui rend leurs intensités moyennes parfaitement équilibrées, tandis que dans le cas réel, il peut y avoir un déséquilibre des largeurs de raies, par exemple à cause de phénomènes de localisation.

### Résultats dans le cas idéal

Dans le cas idéal où les champs entrants sont tous au bruit quantique standard, le modèle présenté ici indique que la différence des intensités est dans un régime quantique : le bruit de la différence des intensités est sous le bruit quantique standard.

Dans la figure 3.24, on présente le calcul des bruits de la différence des amplitudes  $r$ , de la somme  $s$ , et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  en fonction de la fréquence de mesure  $\omega$ . Nous avons choisi dans cette figure une puissance  $P = 2P_0$  fixée (plutôt que  $P_0$  parce qu'au seuil les fluctuations de la somme et des faisceaux individuels divergent, comme nous le verrons tout de suite après). Nous avons aussi fixé le désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$  (puisque le seuil optimal se trouve pour un désaccord voisin de  $-\Omega$ ).

On note que le bruit de la différence  $r$  est inférieur à 1 : le signal et le complémentaire sont quantiquement corrélés. À ces valeurs de puissance et de désaccord, les bruits des amplitudes des faisceaux individuels et la somme des amplitudes sont au-dessus du bruit quantique standard. Les amplitudes des faisceaux individuels ont exactement le même bruit, ce qui est tout à fait attendu dans le cas équilibré. Quand on atteint les très hautes fréquences, les bruits se rapprochent tous du bruit quantique standard. Le pic sur le bruit de la somme et des faisceaux individuels coïncide avec la fréquence correspondant aux largeurs de raie  $\gamma_k$ , qui sont de l'ordre de 0.1 meV dans notre cas, soit 25 GHz.

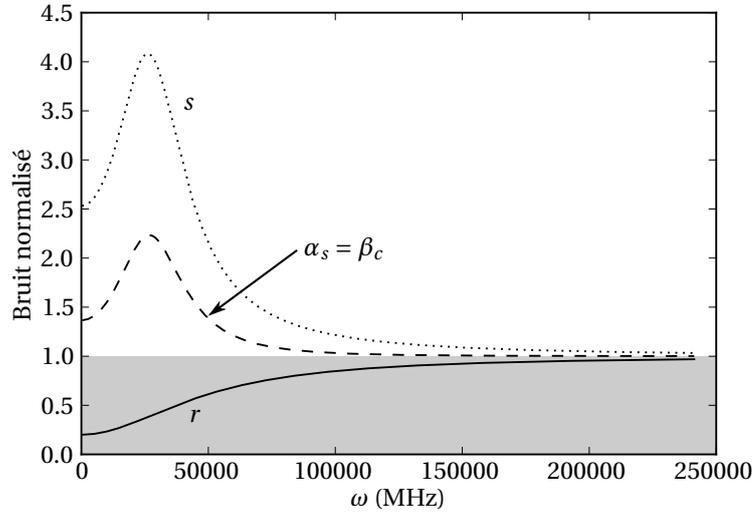


FIGURE 3.24 – Bruit de la différence des amplitudes  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  (tirets) en fonction de la fréquence de mesure  $\omega$ . On a choisi  $P = 2P_0$  et un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ .

Expérimentalement, la fréquence à laquelle on mesure le spectre de bruit est voisine de 2 MHz. La fréquence d'analyse est donc 5 ordres de grandeur plus petite que la fréquence caractéristique du problème (25 GHz pour les largeurs de raie  $\gamma_k$ ). Du point de vue du modèle que nous développons ici, c'est comme si on réalisait la mesure à fréquence nulle.

Dans la figure 3.25, on présente le calcul des bruits en fonction de la puissance de pompe  $P$ . On a fixé le désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ . Le bruit de la différence  $r$  est constant avec la puissance, et reste donc sous le bruit quantique standard. Les bruits d'amplitude de la somme et des faisceaux individuels divergent au seuil. Quand la puissance augmente, ces bruits diminuent, si bien que les bruits des faisceaux individuels passent dans le régime quantique pour  $P \gtrsim 2.5P_0$ , et le bruit de la somme passe également sous le bruit quantique standard pour  $P \gtrsim 4P_0$ . Tous ces comportements ( $r$  constant, somme et faisceaux individuels qui divergent au seuil, et qui sont quantiques au-delà d'une certaine puissance) sont caractéristiques des oscillateurs paramétriques optiques [28] et sont donc normaux dans le cadre de notre modèle.

Enfin, dans la figure 3.26, on présente le calcul des bruits en fonction du désaccord  $(E_p - E_X)/\Omega$ . On a choisi une puissance de pompe  $P = 2P_0$ . Le bruit de la différence  $r$  est d'autant plus petit qu'on est loin de l'exciton, tandis que les bruits d'amplitude de la somme et des faisceaux individuels évoluent dans le sens inverse. On en tire une conclusion pratique importante : la réduction de bruit est d'autant plus forte qu'on excite le système loin sous l'exciton.

### Résultats dans le cas réel

Dans nos mesures expérimentales (figures 3.22 et 3.21), on observe que le bruit de la différence est grand devant 1, typiquement entre 10 et 100 fois le bruit quantique standard, tandis que le bruit de la somme et des faisceaux individuels sont entre 1000 et 10000 fois le bruit quantique standard, et ne semblent pas diminuer

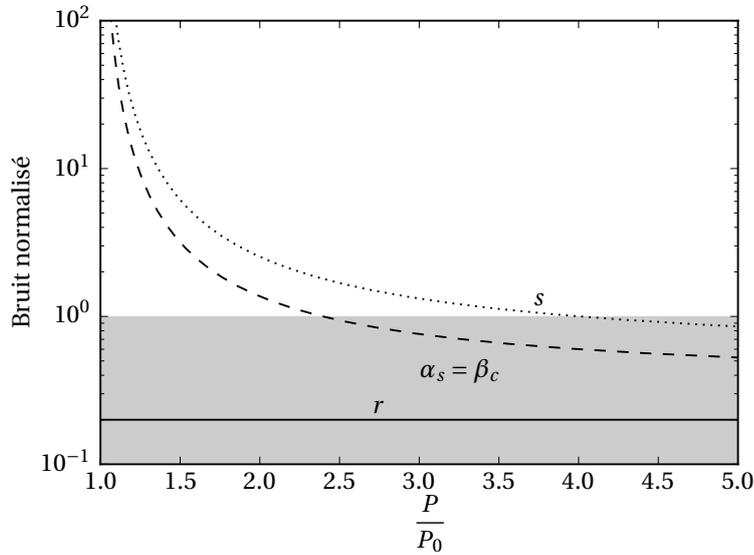


FIGURE 3.25 – Bruit de la différence des amplitudes  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  (tirets) en fonction de la puissance de pompe  $P$  normalisée à la puissance de seuil  $P_0$ . On a choisi  $\omega = 2$  MHz et un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ .

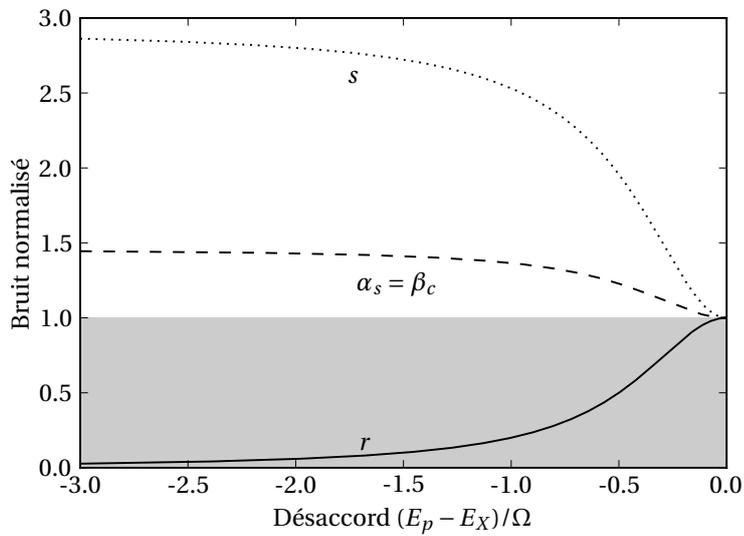


FIGURE 3.26 – Bruit de la différence des amplitudes  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  (tirets) en fonction du désaccord  $(E_p - E_X)/\Omega$ . On a choisi  $\omega = 2$  MHz et une puissance de pompe  $P = 2P_0$ .

avec la puissance. Il est clair que ces observations ne correspondent pas à la situation idéale présentée dans le paragraphe précédent. Nous cherchons ici à évaluer les effets des écarts à cette situation idéale, pour les comparer à nos mesures expérimentales.

**Excès de bruit excitonique** Le modèle indique que les fluctuations d’amplitude de  $r$ ,  $s$  et des faisceaux individuels sont indépendantes des bruit entrants sur la quadrature de phase. Par contre, les excès de bruit sur la quadrature d’amplitude ont un effet notable.

Un excès de bruit entrant sur la composante excitonique du signal et du complémentaire augmente tous les bruits d’amplitude sortants, comme le montre la figure 3.27, où on a ajouté un bruit excitonique égal à 100 fois le bruit quantique standard sur le signal et le complémentaire.

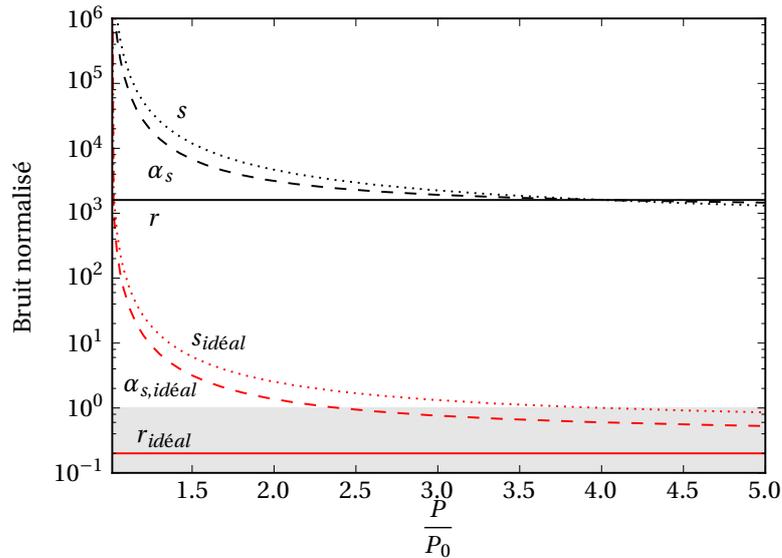


FIGURE 3.27 – Cas d’un excès de bruit entrant excitonique de 100 fois le shot noise sur les modes signal et complémentaire, en fonction de la puissance de pompe  $P$ . Sont représentés les bruits de la différence  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  (points-tirets). En rouge, on a représenté les bruits dans le cas équilibré idéal. On a choisi  $\omega = 2$  MHz et un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ .

Un excès de bruit entrant sur la composante excitonique de la pompe augmente tous les bruits d’amplitude, à l’exception notable de celui de la différence  $r$ , comme l’indique la figure 3.28. C’est aussi une caractéristique des oscillateurs paramétriques équilibrés : la corrélation d’intensité est insensible au bruit de la pompe [28].

**Déséquilibre** L’effet d’un déséquilibre entre les largeurs de raies du signal et du complémentaire est illustré sur le graphe 3.29. Le déséquilibre détruit la corrélation quantique à proximité du seuil, parce que la différence d’intensité se trouve “polluée” par les bruits des faisceaux individuels, qui divergent. Ainsi, au seuil, le bruit d’amplitude de la différence  $r$  diverge, comme celui de la somme. Par contre, dès que  $P$  dépasse une certaine valeur ( $P \gtrsim 1.03P_0$  dans le graphe où on a choisi un déséquilibre de 10%), ce bruit repasse sous le bruit quantique standard. Expérimentalement, les faisceaux sont presque toujours équilibrés à mieux que 10%, et pourtant augmenter la puissance ne fait pas diminuer le bruit de la différence  $r$ . On en déduit donc que l’éventuel déséquilibre entre les largeurs de raie du signal et du complémentaire n’est pas le facteur expérimental limitant (Dans l’annexe A, nous

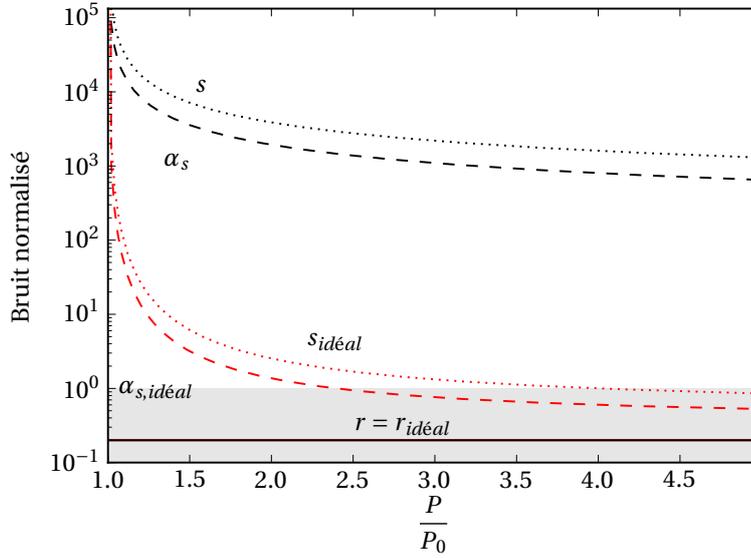


FIGURE 3.28 – Cas d'un excès de bruit entrant excitonique sur le mode de pompe, de 100 fois le shot noise, en fonction de la puissance de pompe  $P$ . Sont représentés les bruits de la différence  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  et  $\beta_c$  (points-tirets). En rouge, on a représenté les bruits dans le cas équilibré idéal. On a choisi  $\omega = 2$  MHz et un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ .

avons discuté de l'effet des pertes optiques à l'extérieur de la cavité, qui peuvent aussi détruire les corrélations quantiques de façon similaire.).

**Bilan et comparaison avec l'expérience** Reprenons les mesures présentées dans les figures 3.22 et 3.21. Le bruit de la différence est nettement supérieur à 1 et augmente avec la puissance. Comme nous venons de le voir, un déséquilibre entre les faisceaux ne permet pas de justifier que le bruit sur la différence augmente. Par contre, en corrigeant le cas idéal par l'ajout de bruit en excès sur les composantes excitoniques, on peut se rapprocher de la mesure expérimentale. Notamment, supposons que l'excès de bruit entrant excitonique dans chaque mode soit proportionnel à la population d'excitons dans ce mode :

$$S_k^{X,in}(\omega) = 1 + \beta X_k^2 |p_k|^2 \quad (3.46)$$

Cette hypothèse correspond à la description du bruit sur l'intensité d'un faisceau réfléchi par la microcavité [20]. Dans notre cas, elle permet de justifier dans une large mesure le comportement des bruits mesurés, comme l'illustre la figure 3.30 sur laquelle on a ajusté la valeur du coefficient  $\beta$ .

La tendance générale, qui veut que les bruits augmentent et que le bruit de la différence soit nettement au-dessus du bruit quantique standard, est reproduite.

Les courbes de bruit théoriques ne reproduisent pas encore tous les détails expérimentaux : en particulier le bruit de la différence ne rejoint pas le bruit de la somme dans l'expérience. D'autre part, le modèle prévoit toujours que les bruits des faisceaux individuels divergent au seuil, ce que nous n'observons pas non plus.

On retiendra cependant que l'obstacle majeur à l'observation du régime de corrélations quantiques est l'excès de bruit provenant des excitons.

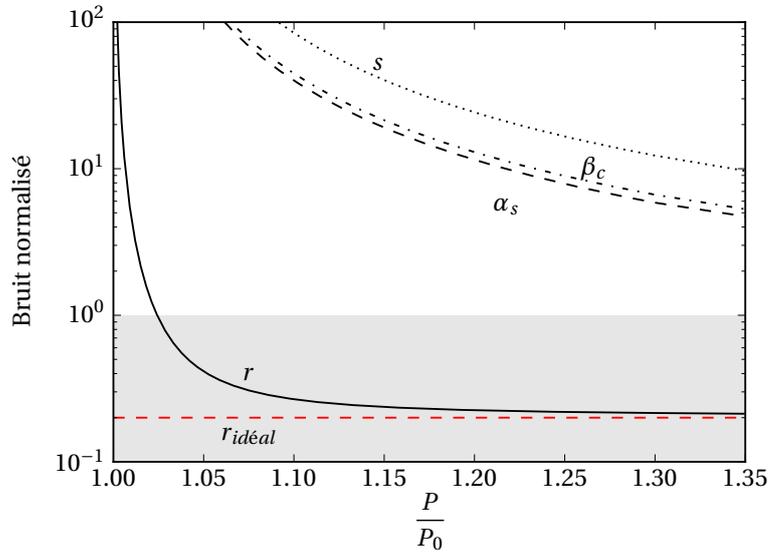


FIGURE 3.29 – Cas d'un déséquilibre de 10% entre les largeurs de raie du signal et du complémentaire, en fonction de la puissance de pompe  $P$ . Sont représentés les bruits de la différence  $r$  (trait plein), de la somme  $s$  (pointillés), et des faisceaux individuels  $\alpha_s$  (tirets) et  $\beta_c$  (points-tirets). En tirets rouges, on a représenté le bruit de la différence dans le cas équilibré idéal. On a choisi  $\omega = 2$  MHz et un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ .

## Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons donc étudié l'oscillation paramétrique optique dans des fils photoniques. Le confinement latéral crée un multiplet de branches de polaritons, et l'anisotropie lève la dégénérescence en polarisation. Ceci nous a permis de montrer l'existence de l'oscillation paramétrique optique dégénérée en énergie, et inversant la polarisation. Les mesures spectrales illustrent la conservation de l'énergie et de l'impulsion qui caractérise sans ambiguïté aucune le processus non-linéaire. Nous avons pu confronter avec succès le comportement en puissance de l'émission non-linéaire avec un modèle où les polaritons de la pompe du signal et du complémentaire sont couplés non-linéairement, en parfaite analogie avec un milieu optique non-linéaire en  $\chi^{(3)}$ . Enfin, nous avons étudié les fluctuations d'intensité des faisceaux, comparés également au modèle de polaritons en interaction. L'origine de l'excès de bruit sur la différence d'intensité, qui empêche le système d'être dans le régime quantique, est associée au bruit d'amplitude provenant du réservoir excitonique. Ces renseignements sont précieux pour comprendre les mécanismes en jeu dans l'excès de bruit. À court terme, le modèle de polaritons en interaction peut être étendu pour inclure d'autres phénomènes comme la luminescence ou des phénomènes d'élargissement non-linéaire qui pourraient intervenir dans le bruit observé. En approfondissant les origines de l'excès de bruit, on peut envisager de le maîtriser, et ainsi à terme de créer une source compacte de photons jumeaux.

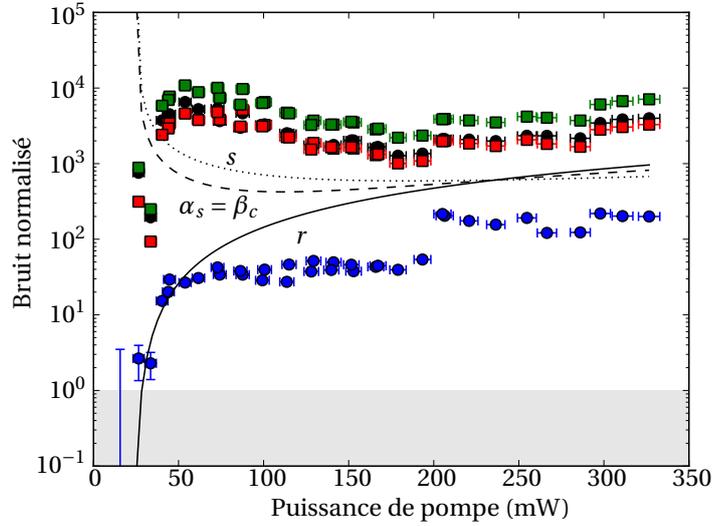


FIGURE 3.30 – Bruits expérimentaux (différence en ronds bleus, somme en carrés verts, faisceaux individuels en carrés rouges et ronds noirs), et résultats du modèle de fluctuations (différence en trait plein, somme en pointillés et faisceaux individuels en tirets), en fonction de la puissance de pompe  $P$ . On a utilisé  $\gamma_X = 0.1$  meV,  $\gamma_C = 0.1$  meV, un désaccord  $E_p - E_X = -\Omega$ ,  $\omega = 2$  MHz et on a supposé les faisceaux équilibrés mais soumis à des excès de bruits excitoniques entrants, proportionnels aux populations (voir texte), avec  $\beta \approx 4 \times 10^2$ .

## Références

1. SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J., STEVENSON, R. M., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M. & ROBERTS, J. S. Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier. *Physical Review Letters* **84**, 1547 (2000).
2. STEVENSON, R. M., ASTRATOV, V. N., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M., EMAM-ISMAIL, M., TARTAKOVSKII, A. I., SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J. & ROBERTS, J. S. Continuous Wave Observation of Massive Polariton Redistribution by Stimulated Scattering in Semiconductor Microcavities. *Physical Review Letters* **85**, 3680 (2000).
3. BAUMBERG, J. J., SAVVIDIS, P. G., STEVENSON, R. M., TARTAKOVSKII, A. I., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M. & ROBERTS, J. S. Parametric oscillation in a vertical microcavity : A polariton condensate or micro-optical parametric oscillation. *Physical Review B* **62**, R16247 (2000).
4. CIUTI, C. Branch-entangled polariton pairs in planar microcavities and photonic wires. *Physical Review B* **69**, 245304 (2004).
5. DASBACH, G., DIEDERICHS, C., TIGNON, J., CIUTI, C., ROUSSIGNOL, P., DELA-LANDE, C., BAYER, M. & FORCHEL, A. Polarization inversion via parametric scattering in quasi-one-dimensional microcavities. *Physical Review B* **71**, 161308 (2005).

6. JEWELL, J. L., SCHERER, A., MCCALL, S. L., GOSSARD, A. C. & ENGLISH, J. H. GaAs-AlAs monolithic microresonator arrays. *Applied Physics Letters* **51**, 94–96 (1987).
7. RIVERA, T., LADAN, F. R., IZRAEL, A., AZOULAY, R., KUSZELEWICZ, R. & OUDAR, J. L. Reduced threshold all-optical bistability in etched quantum well microresonators. *Applied Physics Letters* **64**, 869–871 (1994).
8. TARTAKOVSKII, A. I., KULAKOVSKII, V. D., FORCHEL, A. & REITHMAIER, J. P. Exciton-photon coupling in photonic wires. *Physical Review B* **57**, R6807 (1998).
9. KUTHER, A., BAYER, M., GUTBROD, T., FORCHEL, A., KNIPP, P. A., REINECKE, T. L. & WERNER, R. Confined optical modes in photonic wires. *Physical Review B* **58**, 15744 (1998).
10. DASBACH, G., SCHWAB, M., BAYER, M., KRIZHANOVSKII, D. & FORCHEL, A. Tailoring the polariton dispersion by optical confinement : Access to a manifold of elastic polariton pair scattering channels. *Physical Review B* **66**, 201201 (2002).
11. DASBACH, G. *Spectroscopy of Polaritonic Excitations in Semiconductors* thèse de doct. (Technische Universität Dortmund, 2003).
12. DIEDERICHS, C. *Oscillation paramétrique optique et génération de photons jumaux dans des microcavités de semiconducteurs* thèse de doct. (2007).
13. WERTZ, E., FERRIER, L., SOLNYSHKOV, D. D., JOHNE, R., SANVITTO, D., LEMAÎTRE, A., SAGNES, I., GROUSSON, R., KAVOKIN, A. V., SENELLART, P., MALPUECH, G. & BLOCH, J. Spontaneous formation and optical manipulation of extended polariton condensates. *Nature Physics* **6**, 860–864 (2010).
14. KAITOUNI, R. I., DAÏF, O. E., BAAS, A., RICHARD, M., PARAISO, T., LUGAN, P., GUILLET, T., MORIER-GENOUD, F., GANIÈRE, J. D., STAEHLI, J. L., SAVONA, V. & DEVEAUD, B. Engineering the spatial confinement of exciton polaritons in semiconductors. *Physical Review B* **74**, 155311 (2006).
15. BAJONI, D., SENELLART, P., WERTZ, E., SAGNES, I., MIARD, A., LEMAÎTRE, A. & BLOCH, J. Polariton Laser Using Single Micropillar GaAs-GaAlAs Semiconductor Cavities. *Physical Review Letters* **100**, 047401 (2008).
16. FERRIER, L., PIGEON, S., WERTZ, E., BAMBA, M., SENELLART, P., SAGNES, I., LEMAÎTRE, A., CIUTI, C. & BLOCH, J. Polariton parametric oscillation in a single micropillar cavity. *Applied Physics Letters* **97**, 031105 (2010).
17. WERTZ, E., FERRIER, L., SOLNYSHKOV, D. D., SENELLART, P., BAJONI, D., MIARD, A., LEMAÎTRE, A., MALPUECH, G. & BLOCH, J. Spontaneous formation of a polariton condensate in a planar GaAs microcavity. *Applied Physics Letters* **95**, 051108 (2009).
18. TASSONE, F., PIERMAROCCHI, C., SAVONA, V., QUATTROPANI, A. & SCHWENDIMANN, P. Bottleneck effects in the relaxation and photoluminescence of microcavity polaritons. *Physical Review B* **56**, 7554 (1997).
19. PAU, S., BJÖRK, G., JACOBSON, J., CAO, H. & YAMAMOTO, Y. Microcavity exciton-polariton splitting in the linear regime. *Physical Review B* **51**, 14437 (1995).
20. KARR, J. P., BAAS, A. & GIACOBINO, E. Twin polaritons in semiconductor microcavities. *Physical Review A* **69**, 063807 (2004).
21. ROMANELLI, M., LEYDER, C., KARR, J. P., GIACOBINO, E. & BRAMATI, A. Four Wave Mixing Oscillation in a Semiconductor Microcavity : Generation of Two Correlated Polariton Populations. *Physical Review Letters* **98**, 106401–4 (2007).

22. CIUTI, C., SCHWENDIMANN, P., DEVEAUD, B. & QUATTROPANI, A. Theory of the angle-resonant polariton amplifier. *Physical Review B* **62**, R4825 (2000).
23. CIUTI, C., SCHWENDIMANN, P. & QUATTROPANI, A. Theory of polariton parametric interactions in semiconductor microcavities. *Semiconductor Science and Technology* **18**, S279–S293 (2003).
24. WHITTAKER, D. M. Classical treatment of parametric processes in a strong-coupling planar microcavity. *Physical Review B* **63**, 193305 (2001).
25. TAJ, D., LECOMTE, T., DIEDERICHS, C., ROUSSIGNOL, P., DELALANDE, C. & TIGNON, J. Interbranch parametric oscillation in the weak coupling regime for semiconductor vertical multimicrocavities. *Physical Review B* **80**, 081308 (2009).
26. WALLS, D. F. & MILBURN, G. J. *Quantum optics* (Springer, 2008).
27. BAAS, A., KARR, J. P., ELEUCH, H. & GIACOBINO, E. Optical bistability in semiconductor microcavities. *Physical Review A* **69**, 023809 (2004).
28. FABRE, C., GIACOBINO, E., HEIDMANN, A. & REYNAUD, S. Noise characteristics of a non-degenerate Optical Parametric Oscillator - Application to quantum noise reduction. *Journal de Physique* **50**, 1209–1225 (1989).



## Chapitre 4

# Oscillation paramétrique optique dans une microcavité couplée à basse température et à température ambiante

Dans le chapitre 3, nous avons présenté une première approche de structuration basée sur la gravure latérale de microcavités planaires. Une autre approche est le couplage de plusieurs cavités empilées. Dans ce chapitre 4, nous présentons l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie dans une microcavité couplée à température cryogénique, et vérifions ses caractéristiques paramétriques, en particulier sur les corrélations. Puis, après avoir validé le principe aux basses températures, nous étudions les mécanismes paramétriques dans une microcavité couplée à température ambiante. Nous cherchons en particulier les conditions dans lesquelles le régime d'oscillation paramétrique est accessible. Nous verrons que l'échantillon étudié dans cette thèse nous permet de mesurer les propriétés non-linéaires de la transition excitonique et de prévoir une structure de microcavité double avec des caractéristiques optimisées qui permettent d'atteindre le régime d'oscillation. Un tel dispositif pourrait être une source compacte de faisceaux quantiquement corrélés, fonctionnant à température ambiante.

### 4.1 Oscillation paramétrique dans une microcavité couplée à froid

Présentons tout d'abord quelques résultats sur l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie dans une microcavité multiple, aux températures cryogéniques. Le travail sur les cavités multiples a commencé lors de la thèse de Carole Diederichs [1, 2]. Après l'étude de l'oscillation *verticale*, dégénérée en angle et non-dégénérée en énergie [3] (voir partie 1.5), le processus dégénéré en énergie a été observé dans une microcavité triple. Nous montrerons ci-dessous quelques résultats complémentaires qui démontrent l'origine paramétrique du phénomène.

Rappelons que pour observer l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie

en pompant en incidence normale, il faut pouvoir accéder à au moins deux branches de polaritons : la plus haute fournira le mode de pompe à  $0^\circ$ , tandis que la plus basse fournira les modes signal et complémentaire à angles non-nul et opposés (figure 1.20). Dans le chapitre 3, ces deux branches étaient obtenues grâce à la quantification due au confinement latéral. L'approche alternative que nous étudions dans ce chapitre 4 ainsi que dans le chapitre 5 consiste à utiliser un système composé de plusieurs microcavités empilées et couplées par les miroirs intermédiaires. Les modes photoniques sont alors délocalisés sur toute la structure, et il y a levée de dégénérescence entre ces modes délocalisés. Les polaritons issu du couplage fort avec les modes excitoniques héritent de la délocalisation.

Nous montrons ici quelques résultats obtenus dans une microcavité double à température cryogénique. Les deux cavités fournissent deux branches photoniques qui, couplées aux puits quantiques placés dans chaque cavité, donnent finalement 4 branches de polaritons, dont les deux branches basses serviront au processus paramétrique dégénéré en énergie (figure 4.1(b)).

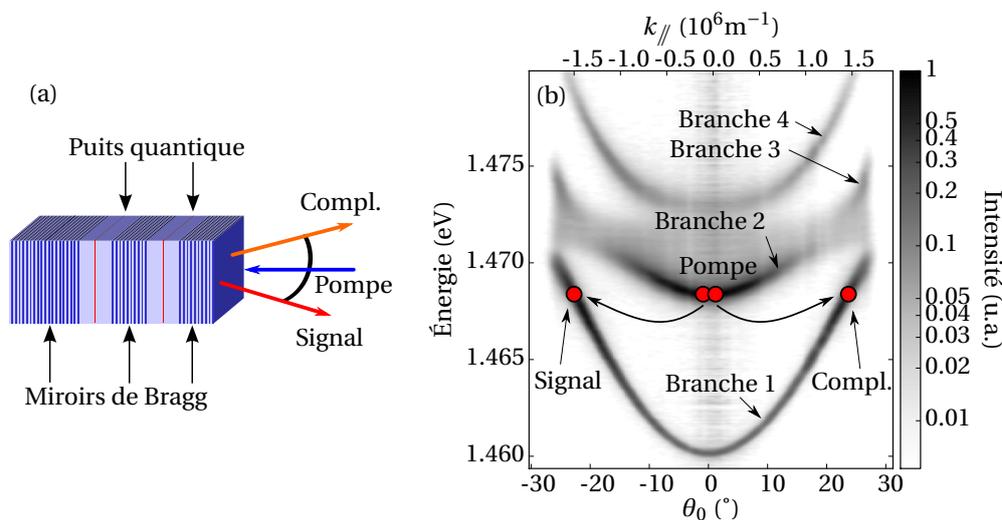


FIGURE 4.1 – (a) Schéma de la structure de microcavité double. (b) Dispersion de photoluminescence expérimentale, en polarisation croisée avec l'excitation, pour une puissance de pompe de 15 mW, sur laquelle est représentée le processus d'oscillation paramétrique recherché.

L'échantillon utilisé est constitué de trois miroirs de Bragg de 16, 13 et 25 paires de couches de GaAs et AlAs, pour une épaisseur totale de  $8.4 \mu\text{m}$ . La structure est prévue pour être étudiée en réflexion, donc le miroir arrière a été conçu plus épais que le miroir frontal. Le nombre relativement élevé de paires dans les miroirs extérieurs assure une finesse élevée ( $F \sim 7000$  pour les modes de cavité). Dans chacune des deux cavités se trouve un puits quantique de  $\text{In}_{0.07}\text{Ga}_{0.93}\text{As}$  de  $80 \text{ \AA}$  d'épaisseur. La transition excitonique de ces puits se trouve à  $1.472 \text{ eV}$ . La figure 4.1(a) représente la structure de l'échantillon, tandis que la figure 4.1(b) donne une dispersion

expérimentale de luminescence dans cet échantillon. Notons sur cette figure la présence de deux branches de polaritons basses en dessous de l'énergie de la transition excitonique, et deux branches hautes au dessus. Sur cette figure nous avons aussi représenté le processus paramétrique recherché : la pompe excite le système sur la deuxième branche de polariton, en incidence normale, et l'oscillation paramétrique produit un couple de polariton signal et complémentaire sur la première branche de polariton, à la même énergie, avec des angles non-nuls et opposés pour assurer la conservation du vecteur d'onde.

Ce processus d'oscillation paramétrique dégénérée est effectivement observé. Sur la figure 4.2(b), nous présentons l'image dans le plan de Fourier de cette émission. Les faisceaux générés par l'effet paramétrique sont les points très intenses en haut et en bas d'un anneau peu intense. Ces faisceaux sont de même polarisation que la pompe, ce qui nous empêche de filtrer la pompe avec un polariseur comme au chapitre 3. Nous avons masqué la pompe pour ne pas saturer le capteur.

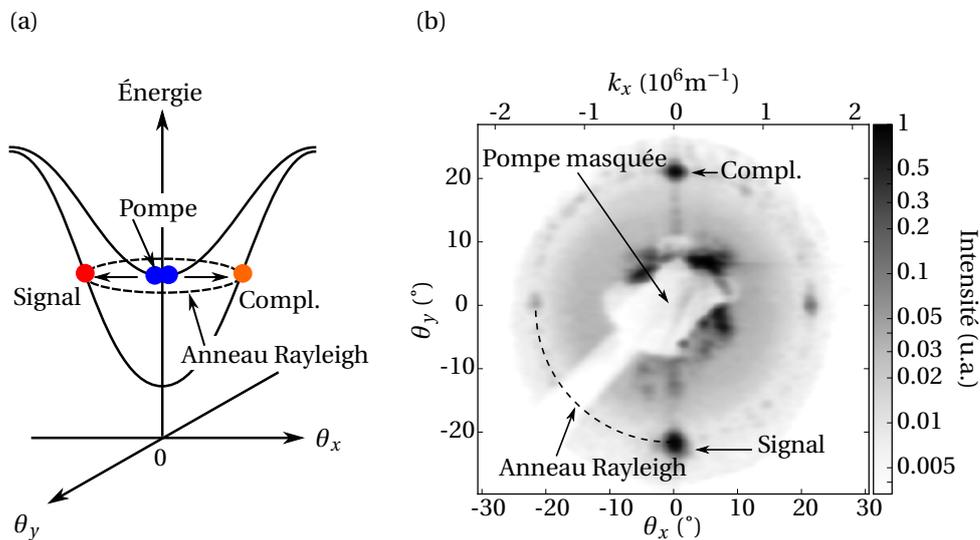


FIGURE 4.2 – (a) Schéma de la dispersion des deux branches basses de polaritons, sur laquelle l'anneau de diffusion Rayleigh est mis en évidence, ainsi que le processus paramétrique recherché. (b) Image de l'émission paramétrique dans le plan de Fourier, pour une puissance de pompe de 3 mW. La pompe, en incidence normale, est masquée pour ne pas saturer le capteur. On distingue l'anneau de diffusion Rayleigh, dont un quart de cercle est représenté en tirets. Les deux points intenses en haut et en bas de l'anneau sont les faisceaux générés par l'émission paramétrique. Il y a également un deuxième couple de deux points à gauche et à droite de l'anneau.

Sur l'image, notons aussi la présence d'un anneau diffus, sur lequel se trouvent les faisceaux paramétriques. Cet anneau correspond à la *diffusion Rayleigh* [4–6], phénomène résonnant et linéaire, qui provoque un changement de vecteur d'onde des photons dans la cavité. Cette diffusion est due au désordre aux interfaces entre les couches composant la structure. Ce désordre est notamment dû au désaccord de

maille entre les couches, qui entraîne des contraintes mécaniques qui relaxent sous forme d'ondulations des interfaces. Notons que ces ondulations ne sont pas isotropes, mais suivent la structure cristalline sous-jacente, selon un phénomène bien connu dans les hétérostructures de semiconducteurs appelé *mosaïcité* [7–9]. La mosaïcité favorise la diffusion Rayleigh le long des axes cristallins. Ainsi, dans le plan de Fourier représenté sur la figure 4.2(b), la diffusion Rayleigh correspond à un anneau diffus de  $20^\circ$  de rayon, sur lequel les quatre points cardinaux sont naturellement plus intenses à cause de l'effet de mosaïcité (le phénomène sera plus visible à température ambiante, dans la partie 4.19). La diffusion Rayleigh peut servir d'amorce pour le processus paramétrique (*seed* en anglais) [10–12], qui va briser la symétrie de révolution sur l'anneau et sélectionner les vecteurs d'onde sur lesquels l'oscillation peut démarrer. Ainsi, les deux points en haut et en bas sont identifiés comme de l'oscillation paramétrique, cette direction ayant été choisie parce qu'elle est favorisée par la mosaïcité.

Dans la figure 4.3, nous vérifions que le processus est bien non-linéaire. Nous notons que l'émission n'est pas visible pour des puissances de pompe inférieures à 7 mW, qui correspond à la puissance de seuil. Au-delà du seuil, le signal et le complémentaire apparaissent et, sur la gamme de puissances présentée dans cette figure, il semble que leurs intensités augmentent comme une fonction affine. Ce comportement en puissance correspond avec les conclusions du modèle déjà présenté dans la partie 3.6 qui décrit l'OPO dégénérée en énergie entre polaritons : ce modèle prévoit que les intensités du signal et du complémentaire varient comme  $\sqrt{P_p} - \sqrt{P_{seuil}}$ , ce qu'on peut développer près du seuil comme une fonction affine de la puissance de pompe. Des données expérimentales à plus grande puissance de pompe confirment l'évolution en  $\sqrt{P_p}$ . Remarquons également que les intensités du signal et du complémentaire ne sont pas parfaitement égales, probablement à cause d'un léger déséquilibre des largeurs de raie de l'un et de l'autre.

Vérifier la présence d'un seuil en puissance n'est pas suffisant pour affirmer que le processus est d'origine paramétrique (ceci nous posera problème à température ambiante, dans la partie 4.5.3). Pour le vérifier sans ambiguïté, il faut ajouter une autre observation. Par exemple, on pourrait essayer d'observer la conservation de l'énergie et du vecteur d'onde quand la pompe n'est pas en incidence normale, comme nous l'avons présenté dans les fils photoniques (voir partie 3.5.4). Ici, nous présentons plutôt un autre argument basé sur les fluctuations d'intensités entre les faisceaux. En effet, le processus paramétrique génère des faisceaux par paire, et les intensités des deux faisceaux doit présenter des corrélations (quantiques dans le cas de l'oscillateur idéal, voir partie 3.7.4). Si l'oscillation démarre sur plusieurs paires de faisceaux, alors les corrélations doivent être visibles entre deux faisceaux du même couple paramétrique. En revanche, entre deux faisceaux appartenant pas à deux paires distinctes, ces corrélations doivent être absentes. C'est ce que nous vérifions sur les figures 4.4 et 4.5.

Sur la figure 4.4 est représentée une mesure du bruit de photons, normalisé au shot noise, obtenue avec le dispositif présenté dans la partie 2.5. Les bruits représentés sont ceux de la somme et de la différence d'intensités du signal et du complémentaire de la figure 4.2(b). Ces deux faisceaux sont diamétralement opposés dans le plan de Fourier, ils appartiennent donc bien à la même paire de faisceaux générés par le processus paramétrique. Ainsi, on observe effectivement de fortes corrélations entre leurs intensités : le bruit de la somme des intensités est environ 5 fois plus grands que le bruit de la différence. Près du seuil, le bruit de la différence tend vers le shot noise. Au-delà du seuil, les deux bruits augmentent linéairement.

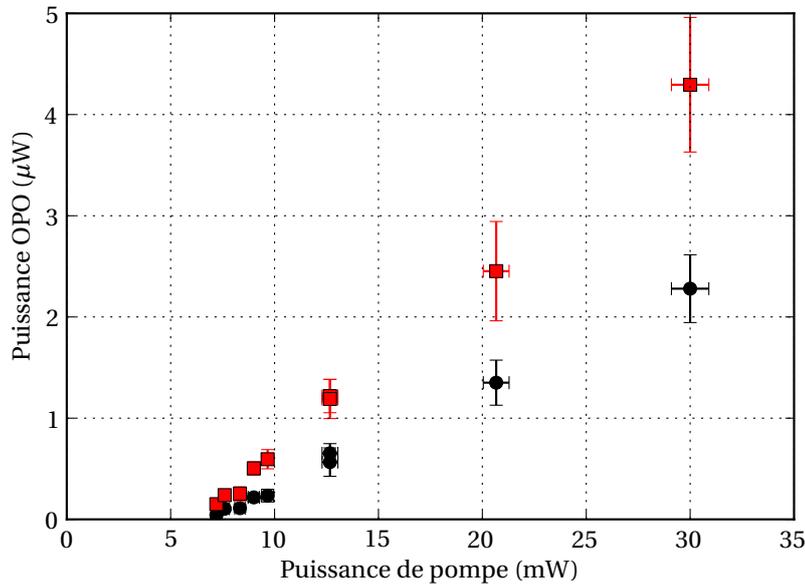


FIGURE 4.3 – Intensités du signal et du complémentaire en fonction de la puissance. Les ronds noirs et les carrés rouges correspondent respectivement au signal et au complémentaire.

Sur la figure 4.5, nous étudions les corrélations dans une situation où l'oscillation a démarré pour deux paires de faisceaux signal et complémentaire (identifiées comme les paires 1 et 2). Là encore, on mesure des corrélations nettes entre les deux faisceaux d'une même paire : sur la partie droite de la figure, notons l'écart entre la somme et la différence pour le signal et le complémentaire de la paire 1 (symboles carrés). En revanche, la mesure sur deux faisceaux de deux paires distinctes ne donnent pas de corrélations. Ainsi, entre le signal 2 et le complémentaire 1 (symboles ronds), la somme et la différence sont égales, aux incertitudes près. Ceci indique sans ambiguïté que le processus est bien paramétrique. Si les 4 faisceaux présentés sur la figure 4.5 étaient produits par la diffusion Rayleigh seule, nous nous serions attendu à mesurer les mêmes corrélations entre tous les faisceaux (voir partie 4.5.3).

Nous avons donc observé l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie dans une microcavité couplée, aux températures cryogéniques. Rien n'empêche a priori d'étudier ce phénomène à plus haute température : en particulier, contrairement aux microcavités planaires, le couplage fort n'est pas indispensable, puisque la conservation de l'énergie et du vecteur d'onde est assurée par la multiplicité des modes de la structure de plusieurs cavités couplées. Il serait intéressant d'obtenir l'oscillation paramétrique à plus haute température, pour avoir à terme une source compacte de faisceaux jumeaux à température ambiante. Dans la suite de ce chapitre, nous analysons les conditions nécessaires à l'obtention de l'oscillation à température ambiante, en se basant sur l'étude d'un échantillon prototype.

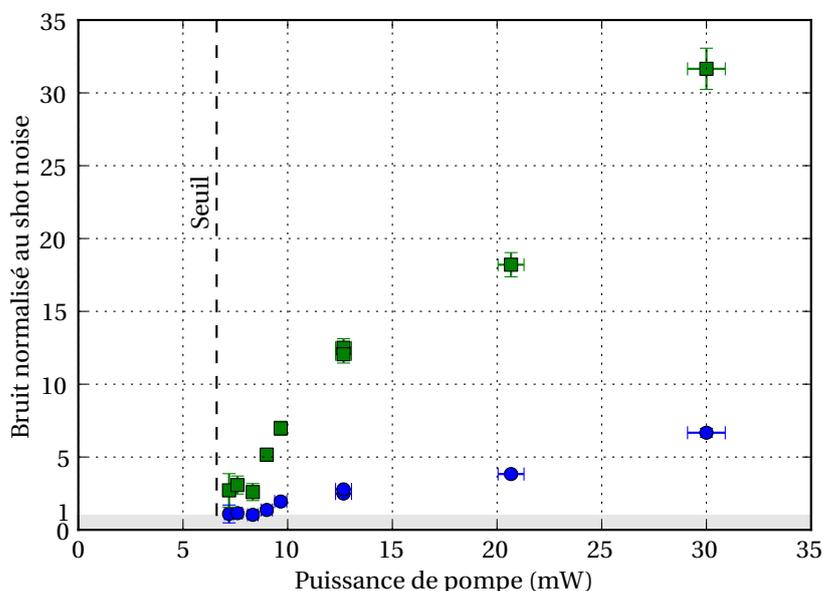


FIGURE 4.4 – Mesure du bruit de la somme (carrés verts) et de la différence (ronds bleus) en fonction de la puissance de pompe. Les conditions expérimentales sont les mêmes que dans la figure 4.3. Le seuil à 7 mW est représenté par la ligne verticale en tirets.

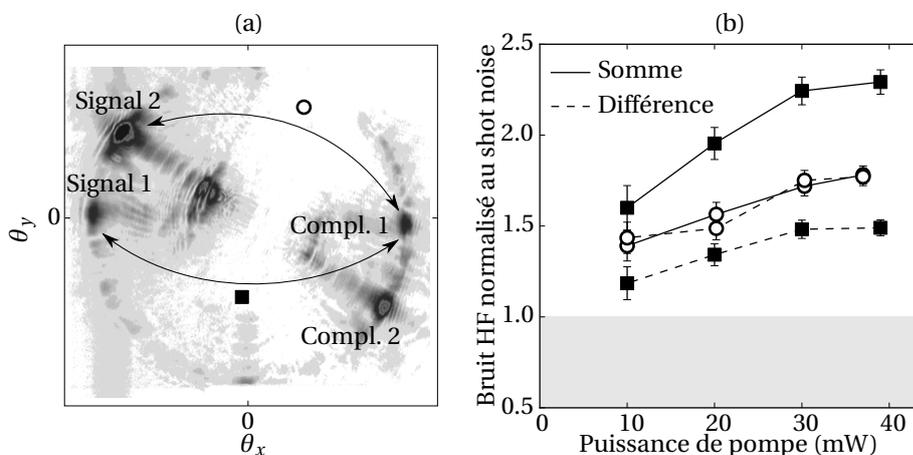


FIGURE 4.5 – (a) Image de l'émission dans le plan de Fourier, où on distingue deux couples de points opposés sur l'anneau Rayleigh. (b) Mesure de bruit entre des points opposés et non-opposés. Les bruits des sommes des intensités sont en traits pleins, les bruits des différences d'intensités en pointillés. Les carrés noirs correspondent à la mesure sur un couple de deux points opposés, et les disques blancs à la mesure sur un couple de deux points non opposés)

## 4.2 État de l'art des microcavités à température ambiante

Les microcavités planaires (simples) ont déjà été largement étudiées et utilisées à température ambiante. Elles sont en particulier la structure de base des lasers à cavité verticale et émission par la surface ("Vertical Cavity Surface Emitting Laser", ou *VCSEL*). Comparativement aux lasers à semiconducteurs à émission par la tranche, ils présentent notamment l'avantage d'avoir une très faible divergence, et peuvent avoir un seuil d'émission très faible en utilisant des miroirs de Bragg très réfléchissants [13–16]. La non-linéarité des puits quantiques a aussi servi à la réalisation de dispositifs bistables [17–20], ou encore de modulateur électro-optique [21]. Même si le mélange à quatre ondes a été étudié dans les structures de puits quantiques multiples (sans cavité) [22], à notre connaissance l'oscillation paramétrique n'a pas encore été envisagée.

Nous étudierons ici une structure de microcavité double, formée par deux cavités juxtaposées contenant chacune plusieurs puits quantiques. Cette structure est similaire à celle où a été observée l'oscillation paramétrique aux températures cryogéniques comme nous l'avons vu dans la partie 4.1, donc elle constitue un bon candidat pour l'oscillation à température ambiante.

## 4.3 Propriétés des microcavités à température ambiante

Identifions tout d'abord ce qui différencie les propriétés des microcavités à température ambiante de leurs propriétés aux températures cryogéniques.

### 4.3.1 Indices optiques

Les indices du GaAs et d'AlAs changent notablement avec la température. Ceci nécessite d'une part un ajustement des épaisseurs de cavité pour que la résonance de cavité soit à proximité de la résonance excitonique. D'autre part, les épaisseurs des couches formant les miroirs de Bragg doivent aussi être ajustées pour que la résonance de cavité soit située à proximité du maximum de réflectivité de la bande d'arrêt des miroirs. GEHRSTZ *et al.* [23] ont publié des formules analytiques précises pour l'indice de refraction de  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  sur toute la gamme  $0 \leq x \leq 1$  en fonction de l'énergie et de la température, que nous utilisons pour concevoir des miroirs de Bragg adaptés à l'étude à température ambiante.

### 4.3.2 Excitons

Les propriétés des excitons changent aussi de manière conséquente en fonction de la température. Résumons leurs propriétés optiques par la susceptibilité  $\chi$ , qu'on exprimera simplement dans le modèle de l'oscillateur de Lorentz [24] :

$$\chi = \frac{f_X E_X^2}{E_X^2 - E^2 - i\Gamma_X E} \quad (4.1)$$

Chacun de ces paramètres, la force d'oscillateur  $f_X$  (sans dimension), l'énergie  $E_X$  et la largeur  $\Gamma_X$ , sont susceptibles de dépendre de l'intensité du champ appliqué, ce qui conduit aux phénomènes optiques non-linéaires. La dépendance en température et en intensité de ces paramètres nous permettront de savoir dans quelles conditions l'oscillation paramétrique optique est possible à température ambiante.

### Énergie

L'énergie de bande interdite des semiconducteurs varie notablement avec la température [25]. Pour le GaAs par exemple :

$$E_g = E_0 - \alpha \frac{T^2}{T + \beta} \quad (4.2)$$

Les paramètres sont :  $E_0 = 1.519$  eV,  $\alpha = 5.405 \times 10^{-4}$  eV/K,  $\beta = 204$  K

L'énergie  $E_X$  de l'exciton est située sous l'énergie de bande interdite, à une distance définie par l'énergie de liaison, qui est une grandeur essentiellement structurale, liée à la taille de l'exciton (voir chapitre 1). En première approximation, on peut supposer que l'énergie de l'exciton évolue donc comme l'énergie de bande interdite :

$$E_X = E_{X,0} - \alpha \frac{T^2}{T + \beta} \quad (4.3)$$

### Largeur spectrale de la transition excitonique

La largeur de l'exciton est composée de deux termes : une largeur homogène, qui comprend la largeur radiative  $\Gamma_R$ , l'élargissement par les phonons, etc., et une largeur inhomogène, qui peut être due par exemple aux fluctuations d'épaisseur du puits quantique, ou à la présence d'impuretés. Parmi ces largeurs, celles faisant intervenir les phonons dépendent de la température. On les décompose en deux parties, pour les phonons acoustiques et optiques. Finalement, on peut écrire la largeur de l'exciton comme [22, 24, 26–30] :

$$\Gamma_X = \Gamma_0 + \sigma T + \frac{\Gamma_{ph}}{e^{-\frac{\hbar\Omega_{LO}}{kT}} - 1} \quad (4.4)$$

À proximité de la température ambiante, le canal de relaxation par les phonons optiques est actif ( $\hbar\Omega_{LO} \approx 36$  meV, à comparer avec  $kT_{amb} = 25$  meV). Ainsi, à cause des phonons acoustiques et optiques, la largeur spectrale de la transition excitonique est dramatiquement augmentée à température ambiante.

### Force d'oscillateur

La force d'oscillateur de l'exciton, directement liée à sa largeur radiative, est essentiellement une grandeur structurale, qui est donc à peu près constante avec la température [28].

### Non-linéarité optique

Dans la partie 1.2.4, nous avons évoqué plusieurs non-linéarités de la réponse optique de l'exciton, d'origines légèrement différentes. Quand la température approche de la température ambiante, nous verrons que l'effet de la renormalisation de l'énergie de l'exciton devient négligeable devant sa largeur (voir partie 4.4.2). Restent donc les non-linéarités de saturation, qui sont en partie liées au blocage de Pauli, et en partie aux interactions d'échange et coulombiennes entre électrons et trous. Comme l'indiquent SCHMITT-RINK *et al.* [31], la densité de saturation tend à être plus faible à basse température. En effet, quand la température augmente, une

partie des excitons est ionisée par les phonons en paires libres électrons-trous. À l'équilibre, dans un semiconducteur non-dégénéré, la proportion d'électrons/trous libres par rapport aux excitons dépend beaucoup de la température [22] :

$$\frac{N_e N_h}{N_X} = g(E) k T e^{\frac{-B}{kT}} \quad (4.5)$$

$$g(E) = \frac{m_e^*}{\pi \hbar^2} \quad (4.6)$$

où  $N_e$ ,  $N_h$  et  $N_X$  sont les densités d'électrons libres, de trous libres, et d'excitons et  $B$  est l'énergie de liaison de l'exciton.

Autrement dit, dès qu'un exciton est formé, il est susceptible d'être ionisé en une paire électron-trou, et ceci d'autant plus vite que la température est élevée. Ces paires sont d'énergie différente et ne participent donc plus à remplir et bloquer l'espace des phases des excitons selon le principe de Pauli, ce qui tend à augmenter la densité de saturation.

#### Résumé

En fonction de la température, l'énergie et la largeur spectrale de la transition excitonique changent notablement. Étant donnée la largeur spectrale excitonique à température ambiante ( $\approx 9$  meV), les photons de cavité et l'exciton sont en couplage faible (à moins de placer un très grand nombre de puits, ce qui contribue à renforcer la force d'oscillateur). La force d'oscillateur ne change pas, et la densité de saturation augmente.

## 4.4 Étude de $\chi$ par la dispersion en photoluminescence, en excitation non-résonante

Avant d'analyser l'oscillation paramétrique proprement dite, nous nous intéressons à caractériser la réponse non-linéaire d'une microcavité à température ambiante. Dans un premier temps, nous allons étudier comment la photoluminescence de la microcavité au voisinage de la transition excitonique se comporte avec la puissance. L'étude des spectres de photoluminescence nous donnera accès à la susceptibilité de l'exciton. Pour cela, établissons d'abord un modèle de photoluminescence tenant compte de cette susceptibilité. Ce modèle est particulièrement adapté à la situation du couplage faible, où la cavité optique agit comme un filtre spectral sur l'émission excitonique.

### 4.4.1 Modèle de photoluminescence

Considérons un puits quantique qui luminesce grâce à un pompage optique, placé dans une cavité (figures 4.6 et 4.7). On cherche à prévoir l'allure des spectres de luminescence de ce système, à proximité de l'énergie de résonance de l'exciton. On modélise le comportement optique de celui-ci par un oscillateur de Lorentz de susceptibilité  $\chi$ , définie par sa force d'oscillateur  $f_X$ , l'énergie de résonance  $E_X$  et la largeur à mi-hauteur de la résonance  $\Gamma_X$  :

$$\chi = \frac{f_X E_X^2}{E_X^2 - E^2 - i\Gamma_X E} \quad (4.7)$$

En développant cette expression à proximité de la résonance,  $\chi$  se réécrit sous la forme :

$$\chi \approx \frac{f_X E_X}{\Gamma_X} \frac{-\frac{E - E_X}{\Gamma_X/2} + i}{1 + \left(\frac{E - E_X}{\Gamma_X/2}\right)^2} \quad (4.8)$$

La partie réelle  $\Re(\chi)$  de la susceptibilité a la forme dispersive usuelle et sa partie imaginaire  $\Im(\chi)$ , qui représente l'absorption, a la forme lorentzienne usuelle.

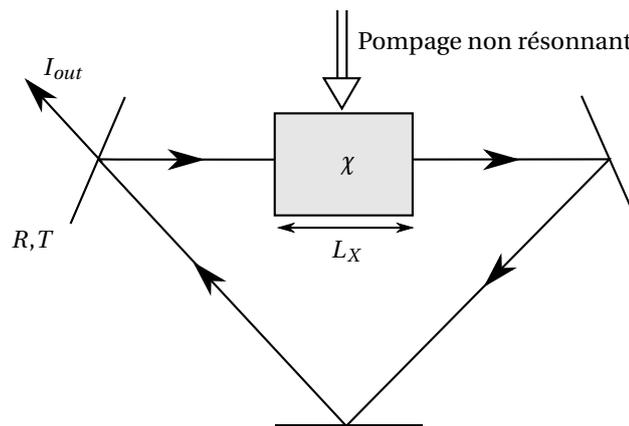


FIGURE 4.6 – Schéma correspondant au modèle de l'expérience de photoluminescence d'un exciton dans une cavité.

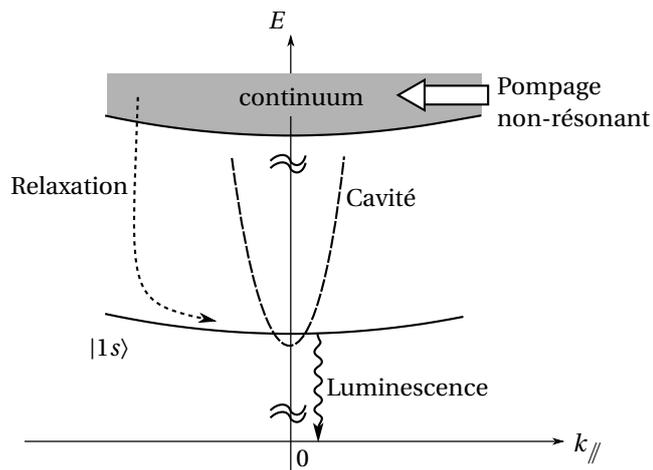


FIGURE 4.7 – Dispersion de la cavité, de l'exciton et du continuum, et principe de la mesure de photoluminescence par excitation non résonante

Modélisons la cavité par un résonateur en anneau<sup>1</sup>, dont un seul des miroirs est semi-réfléchissant, de réflectivité en amplitude  $r$ , et de transmittivité  $t$ . Sur le miroir, les amplitudes sont liées par un système de 2 équations :

$$\mathcal{A}(0) = t\mathcal{A}^{in} - r\mathcal{A}' \quad (4.9)$$

$$\mathcal{A}^{out} = r\mathcal{A}^{in} + t\mathcal{A}' \quad (4.10)$$

On suppose qu'il n'y a pas de champ incident :  $\mathcal{A}^{in} = 0$ . Le champ  $\mathcal{A}'$  incident à la face intérieure du miroir tient compte du déphasage  $e^{i\Phi}$  de la cavité, et s'écrit :

$$\mathcal{A}' = e^{i\Phi} \mathcal{A}(L_X) \quad (4.11)$$

Le champ  $\mathcal{A}(L_X)$  est enfin lié au champ  $\mathcal{A}(0)$  en tenant compte de la susceptibilité du puits d'une part, et la luminescence qui joue le rôle d'un terme source  $f$  :

$$\mathcal{A}(L_X) = e^{ik\chi L_X} \mathcal{A}(0) + f \quad (4.12)$$

On peut résoudre ce système, ce qui donne :

$$\mathcal{A}_{out} = \frac{tf}{1 + r e^{i(k\chi L_X + \Phi)}} \quad (4.13)$$

Supposons qu'on observe près de la résonance :  $k\chi L_X + \Phi \approx \pi[2\pi]$ , et que le miroir soit très réfléchissant :  $r \approx 1 - T/2$ . Notons  $F = f^2$ . L'expression de l'intensité sortante  $I_{out}$  s'écrit alors :

$$\mathcal{I}_{out} = \frac{TF}{(T/2 + k\Im(\chi)L_X)^2 + (\delta + k\Re(\chi)L_X)^2} \quad (4.14)$$

Introduisons des grandeurs énergétiques pour nous rapprocher de la description expérimentale : l'énergie de résonance de la cavité nue est notée  $E_C$ , l'énergie du mode fondamental de cette même cavité est notée  $E_0$  (dans les microcavités, le mode de cavité accessible vérifie  $E_C \approx 4E_0$ ), la largeur à mi-hauteur de la cavité nue, notée  $\Gamma_C$ . Ces grandeurs viennent remplacer  $T$  et  $\delta$  dans l'expression ci-dessus, si bien qu'on obtient :

$$\mathcal{I}_{out} = \frac{F \frac{\pi\Gamma_C}{E_0}}{\left(\frac{\pi\Gamma_C}{2E_0} + k\Im(\chi)L_X\right)^2 + \left(\frac{\pi(E - E_C)}{E_0} + k\Re(\chi)L_X\right)^2} \quad (4.15)$$

Dans cette équation pour  $\mathcal{I}_{out}$ , on note au dénominateur que la partie imaginaire de  $\chi$  contribue à élargir la raie de luminescence en comparaison de la largeur spectrale  $\Gamma_C$  de la cavité nue, tandis que la partie réelle de  $\chi$  provoque un décalage de l'énergie de résonance.

Enfin, la luminescence interne  $F$  est elle-même le produit de deux termes : l'absorption de l'exciton  $\Im(\chi)$  et un facteur de distribution statistique de l'émission qui, à 300K, peut simplement être approximé par une distribution de Boltzmann  $f_T = \exp\left(\frac{-E}{kT}\right)$ , qui module lentement l'intensité de la luminescence avec l'énergie :

$$F \propto \Im(\chi) f_T \quad (4.16)$$

1. Comme nous l'avons annoncé au chapitre 1, contrairement à une cavité planaire, un résonateur en anneau ne permet la circulation du champ que dans une direction seulement. Ceci permet de négliger les réflexions aux interfaces, et donc de simplifier considérablement le modèle

Ainsi, l'observation des spectres de photoluminescence doit permettre notamment d'estimer précisément les paramètres décrivant l'exciton,  $f_X$ ,  $E_X$ , et  $\Gamma_X$ , dans le régime linéaire, et aussi en fonction de l'intensité de pompage.

#### 4.4.2 Expérience de photoluminescence

Nous avons étudié le comportement des excitons dans un échantillon conçu initialement pour rechercher l'oscillation paramétrique optique à température ambiante. Il s'agit d'une microcavité double fabriqué au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures (LPN), dont les 3 miroirs sont respectivement composés de 13, 13 et 22 paires de GaAs/AlAs, contenant 3 puits quantiques de  $\text{In}_{0.1}\text{Ga}_{0.9}\text{As}$  de 80 Å dans chaque cavité. Avant croissance, on s'attend à observer l'exciton au voisinage de 1.354 eV. La structure complète fait 8 µm d'épaisseur.

Pour observer la photoluminescence, on pompe l'échantillon en incidence normale, à une énergie très supérieure à l'énergie de bande interdite du GaAs. Les photons sont ainsi absorbés, et les porteurs relaxent jusqu'à se recombiner dans le bas de bande de l'exciton  $1s$  (figure 4.7)<sup>2</sup>. Dans cette série de mesure, on se place dans une zone de l'échantillon où les deux cavités sont très éloignées l'une de l'autre en énergie, donc bien découplées, de sorte qu'une seule se trouve à proximité de l'exciton. On a ainsi affaire à l'équivalent d'une cavité simple contenant 3 puits quantiques.

On mesure ensuite la dispersion de photoluminescence pour un certain nombre de puissances comprises entre la puissance maximale accessible avec le montage, et la puissance minimale pour laquelle le temps de pose nécessaire à l'acquisition d'une dispersion suffisamment peu bruitée atteint 1 minute.

La figure 4.8 représente une dispersion typique obtenue à très basse puissance, tandis que la figure 4.9 représente la dispersion obtenue à très forte puissance, les autres paramètres étant restés identiques. On note l'affinement des raies quand la puissance augmente. En effet, plus la puissance est grande, plus l'exciton sature, ce qui a pour effet de diminuer les pertes dans la cavité et d'augmenter la finesse de cette dernière. Ainsi, la luminescence filtrée par la cavité est plus fine.

Finalement, chaque tranche de dispersion, prise sur une petite échelle de vecteurs d'onde, peut être fittée par le modèle précédent. On réalise un ajustement des paramètres du modèle sur l'ensemble des dispersions obtenues à une puissance donnée. On a alors 4 paramètres ajustables globaux : les 3 paramètres qui caractérisent l'exciton,  $f_X$ ,  $E_X$ , et  $\Gamma_X$ , et un paramètre pour caractériser la cavité,  $\Gamma_C$ . Sur chaque dispersion se rajoutent 2 paramètres : l'énergie de la cavité en incidence normale,  $E_C$ , et un facteur d'échelle pour l'intensité totale, noté  $m$ . Compte-tenu de l'ouverture numérique du dispositif de visualisation, et de la largeur des raies, chaque dispersion fournit 40 spectres indépendants, chacun correspondant un vecteur d'onde différent. Si on réalise l'ajustement sur  $N$  dispersions, on a donc  $40N$  spectres à fitter avec  $4 + 2N$  paramètres. Les valeurs obtenues pour chaque paramètre sont fiables tant que l'exciton n'est pas trop saturé, c'est-à-dire tant que son absorption n'est pas trop petite devant la queue d'absorption du GaAs massif, dont on a négligé la dépendance en énergie dans le modèle.

Les figures 4.10 et 4.11 donnent quelques exemples de spectres expérimentaux accompagnés des courbes théoriques dont les paramètres ont été ajustés. Enfin, la

2. L'objectif étant de mesurer l'influence de l'intensité du pompage, nous avons choisi de ne pas pomper en résonance avec le mode de cavité, pour éviter précisément d'avoir à ajuster l'énergie du laser pour chaque intensité afin de rester à résonance.

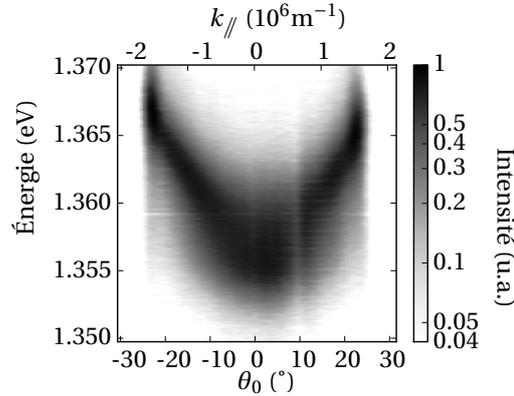


FIGURE 4.8 – Dispersion typique obtenue à basse puissance de pompe (9 mW,  $T = 300$  K).

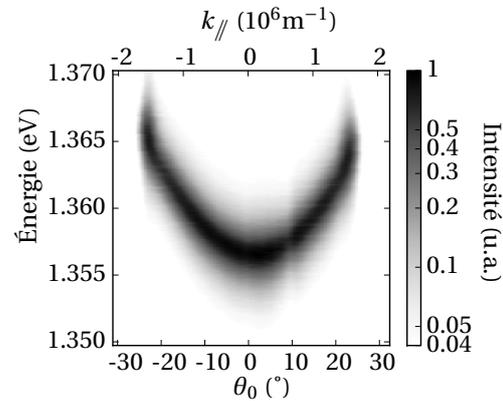


FIGURE 4.9 – Dispersion typique à haute puissance de pompe (195 mW,  $T = 300$  K), au même point de l'échantillon que pour la figure 4.8.

figure 4.12 reproduit les résultats obtenus en fonction de la puissance du pompage.

On observe ainsi que la force d'oscillateur  $f_X$  de l'exciton reste à peu près constante. La force d'oscillateur quantitative de l'exciton doit être extraite en tenant compte du nombre de puits et de leur épaisseur. Sachant qu'on excite  $N = 3$  puits d'épaisseur  $l = 80 \text{ \AA}$ , la force d'oscillateur de l'exciton dans un puits quantique unique est  $f_X \approx 1.2 \times 10^{-3}$ .

La largeur  $\Gamma_X$  augmente notablement avec la puissance. Dans la gamme de puissance considérée, on peut fitter cette largeur par une fonction affine d'expression  $\Gamma_X^0 + \alpha P$ , avec  $\Gamma_X^0 = 9.1 \text{ meV}$  et  $\alpha = 0.21 \text{ meV/mW}$ .

L'énergie de l'exciton semble se décaler lentement avec la puissance, en diminuant de 2 meV de 0 à 40 mW, puis en remontant de 5 meV jusqu'à 120 mW. Ce décalage en énergie peut provenir de l'interaction entre excitons, mais aussi du changement de la constante diélectrique du puits quantique à cause de la création de porteurs libres par le pompage. Quelqu'en soit la cause, ce décalage en énergie est relativement faible comparé à l'élargissement de la transition. En effet, à 40 mW, la largeur à mi-hauteur de l'exciton est déjà de 17 meV.

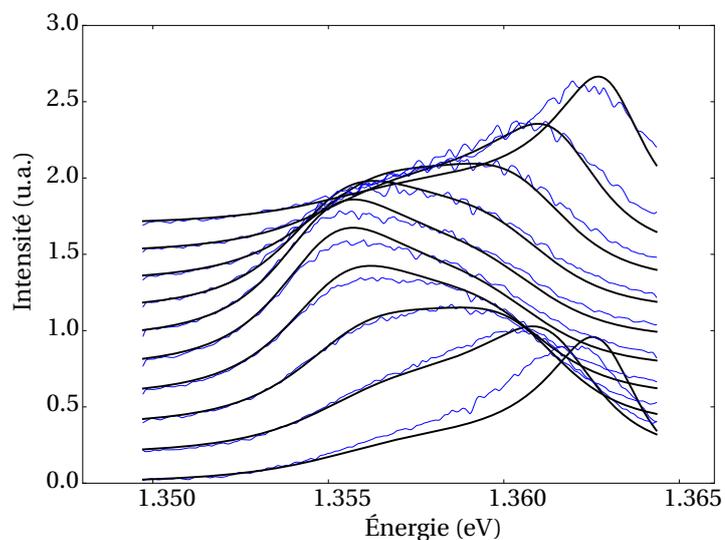


FIGURE 4.10 – Spectres obtenus à partir de coupes à  $k_{\parallel}$  constant de la dispersion 4.8. Les traits fins sont les spectres bruts. Les traits épais sont les profils ajustés d’après le modèle décrit dans le texte ( $T = 300$  K).

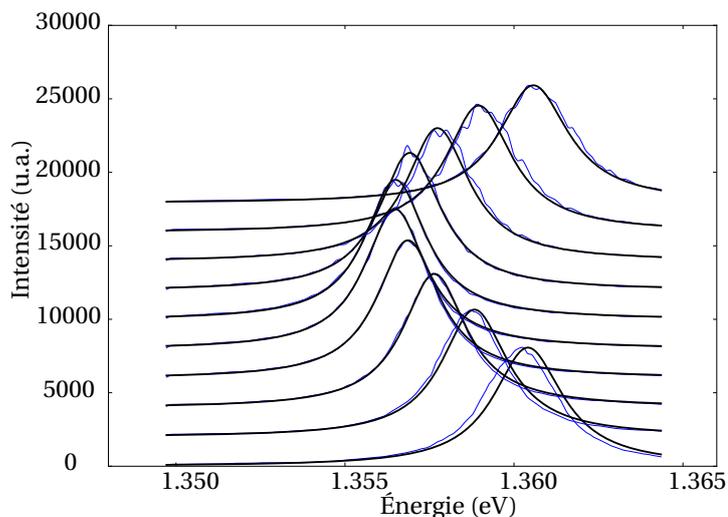


FIGURE 4.11 – Spectres obtenus à partir de coupes à  $k_{\parallel}$  constant de la dispersion 4.9. Les traits fins sont les spectres bruts. Les traits épais sont les profils ajustés d’après le modèle décrit dans le texte ( $T = 300$  K).

Les paramètres de cavité, quant à eux, restent à peu près constants : on trouve  $\Gamma_C^0 \approx 0.7$  meV.

Dans la suite, on utilisera les propriétés de l’exciton mesurées ici, notamment la largeur  $\Gamma_X^0 \approx 9.1$  meV, ainsi que la force d’oscillateur  $f_X \approx 1.2 \times 10^{-3}$ .

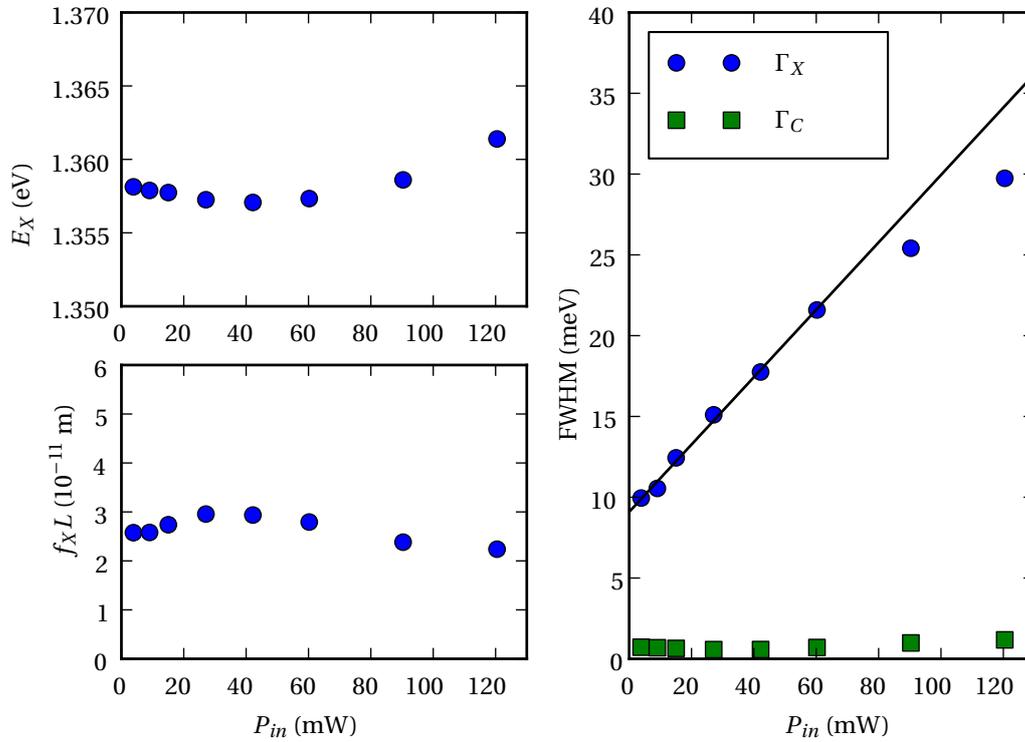


FIGURE 4.12 – Énergie de l'exciton, force d'oscillateur, et largeurs de l'exciton et de la cavité, en fonction de la puissance de pompe. La largeur de l'exciton est fittée par une courbe affine d'expression  $\Gamma_X^0 + \alpha P$ , avec  $\Gamma_X^0 = 9.1$  meV et  $\alpha = 0.21$  meV/mW.

## 4.5 Processus en excitation résonante

Après avoir étudié la susceptibilité non-linéaire de l'exciton à température ambiante, analysons les processus qui en découlent lors d'une excitation résonante.

### 4.5.1 Comparaison avec l'étude non-résonnante

#### Modèle de saturation

Dans la partie précédente, nous avons excité la structure à haute énergie, au-dessus de la bande interdite du GaAs. Le mécanisme était alors le suivant : les photons étaient absorbés par le GaAs, puis les porteurs relaxaient dans le niveau excitonique, se recombinaient, et la luminescence était filtrée par la cavité.

En excitation résonnante, en revanche, on pompe directement le niveau excitonique, au travers de la cavité. Ainsi l'énergie de pompage devient identique à l'énergie d'observation. De même, la saturation de l'exciton avec l'intensité devient dépendante de l'énergie d'excitation : en effet, à intensité identique, si on pompe plus loin de la résonance excitonique, la saturation est moindre. Le modèle de saturation de la transition excitonique devra prendre en compte cet état de fait. On choisit d'adopter le modèle de saturation du système à deux niveaux, bien connu de la lit-

térature, présenté dans la partie 1.1.2, et détaillé par exemple par BOYD [32]. Dans ce modèle, on connaît tous les paramètres linéaires à partir de l'étude précédente, mais il reste à évaluer la valeur de l'intensité de saturation en résonance.

En excitation hors résonance, nous avons observé un élargissement de l'exciton de la forme  $\Gamma_X^0 + \alpha P$ . Réécrivons ceci sous la forme  $\Gamma_X^0 \left(1 + \frac{P}{P_{s,HR}}\right)$ . Ceci définit arbitrairement une puissance de saturation  $P_{s,HR} = 0.023$  mW. Supposons que la densité d'excitons à la saturation est une constante, il reste donc simplement à comparer les coefficients d'absorption. Hors résonance, on pompe au-dessus de la bande interdite du GaAs, où le coefficient d'absorption est de l'ordre de  $10^4 \text{ cm}^{-1}$  (à 300K, pour  $E \approx 1.4$  eV) [33]. Toutes les couches de GaAs absorbent, soit une épaisseur d'absorption de l'ordre de  $6 \mu\text{m}$  dans notre échantillon. On trouve donc  $\alpha_{GaAs,HR} L_{GaAs} \approx 6$ . Au contraire, quand on est parfaitement en résonance avec l'exciton, et en supposant que le taux de capture est égal à 1, on a  $\alpha_{X,0} L_X \approx 9.5 \times 10^{-3}$  [22], soit plus de deux ordres de grandeur *de moins* qu'en excitation non-résonnante. L'intensité de saturation est donc certainement *de plusieurs ordres de grandeur plus grande* qu'en excitation non-résonnante. Nous mesurerons cette intensité de saturation dans la suite de ce chapitre.

### Largeurs de cavité

En excitation résonante, les deux cavités de l'échantillon sont replacées à la même énergie, de sorte qu'on obtient deux modes délocalisés sur les deux cavités de l'échantillon (figure 4.13). Ces deux modes ont la même largeur  $\Gamma_C$ , que l'on mesure expérimentalement à 1.1 meV (par mesure de luminescence à basse intensité, loin de l'exciton). Celle-ci est donc légèrement supérieure à celle mesurée dans la partie précédente. En effet, nous y avons volontairement découplé une des deux cavités. Une seule cavité restait alors à l'énergie du laser, et se trouvait être la cavité la plus éloignée de la surface de l'échantillon, profitant donc d'un meilleur isolement avec l'extérieur. On mesurait donc une largeur plus petite (0.7 meV).

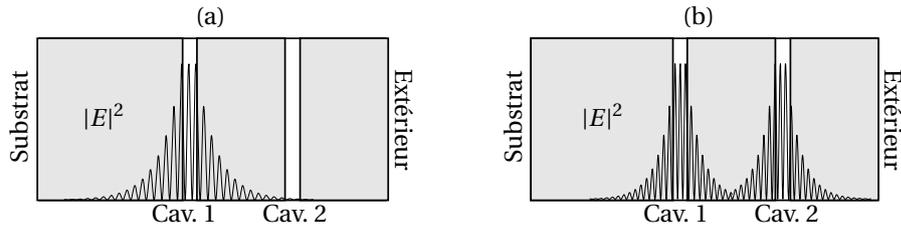


FIGURE 4.13 – Profils de l'intensité du champ  $|E|^2$  dans la structure, pour les deux configurations étudiées : (a) Configuration "découplée" utilisée dans l'étude de luminescence de la partie 4.4. Une seule cavité est étudiée, l'autre est résonnante à plus haute énergie. (b) Configuration "couplée" utilisée dans l'étude des processus résonnants dans la partie 4.5. Les deux cavités sont dégénérées et le champ est délocalisé dans toute la structure.

### Nombre de puits

Dans la partie 4.4 où nous avons volontairement découplé une des deux cavités (figure 4.13), seuls 3 puits quantiques participaient à la luminescence, ceux de la cavité observée. En excitation résonnante, où nous étudions les modes délocalisés, l'ensemble des 6 puits quantiques de l'échantillon est excité. Néanmoins, la signification physique des modes délocalisés est que le photon a une probabilité  $\frac{1}{2}$  d'être dans chacune des deux cavités. Finalement, tout se passe donc comme si seulement 3 puits étaient excités.

#### 4.5.2 Réflectivité

L'échantillon est éclairé en incidence normale, et on observe l'intensité réfléchie (figure 4.14). La figure 4.15 reproduit un résultat typique de mesure. A basse puissance, la dépendance est linéaire. Il apparaît un changement de pente à proximité de 30 mW.

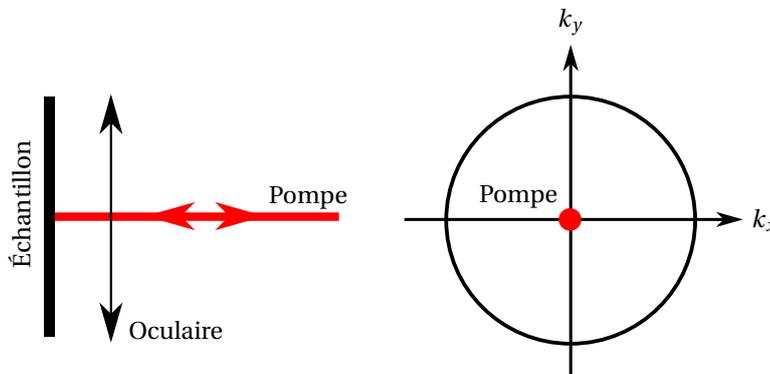


FIGURE 4.14 – Principe de la mesure de l'intensité de pompe réfléchie.

En comparaison, le modèle de la microcavité vue comme un système à 2 niveaux (l'exciton), placé dans un résonateur, que nous avons développé plus haut, prévoit qualitativement ce comportement expérimental nettement non-linéaire pour la réflectivité (figure 4.16), typique d'un milieu saturable placé dans une cavité (qui peut être bistable pour un certain jeu de paramètres) [32].

À très faible intensité, l'exciton est non-saturé et absorbe beaucoup, ce qui rend l'effet de surtension de la cavité faible. Au contraire, au-delà d'une certaine intensité, l'exciton sature et l'effet de surtension de la cavité devient efficace, et la structure globale devient plus absorbante. Encore à plus forte puissance, l'absorption de l'exciton continue à baisser, et globalement la structure absorbe également moins.

L'intensité réfléchie reflète ce changement de régime : à faible intensité, une grande partie l'intensité est réfléchie, puis l'absorption augmente jusqu'à rendre la réflectivité de la structure absolument nulle, et enfin, à forte intensité, la réflectivité augmente de nouveau pour rejoindre celle de la cavité nue. Grâce à la comparaison entre les figures 4.15 et 4.16, on identifie l'intensité de saturation de notre échantillon par exemple en repérant la position du minimum local sur la courbe de réflectivité : ce minimum se trouve d'après le modèle à  $\frac{I_{0,in}}{I_S} \approx 0.05$ , et dans l'expérience il

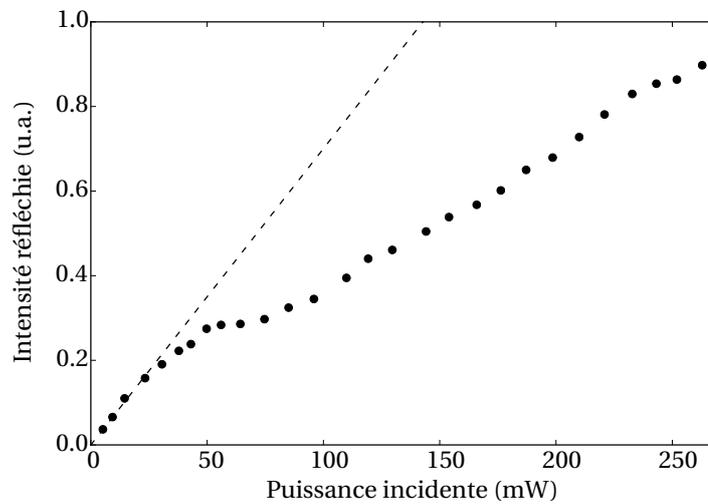


FIGURE 4.15 – Résultat typique de mesure de l'intensité de pompe réfléchie ( $E = 1.359$  eV). La ligne en tirets est un fit linéaire à basse puissance.

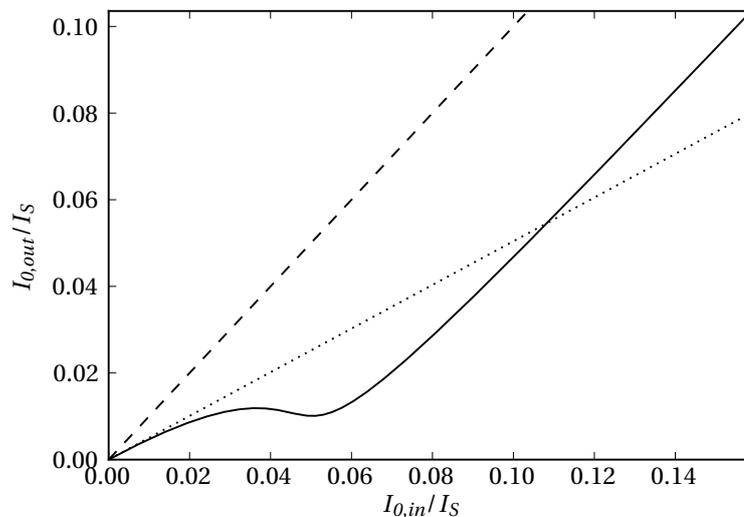


FIGURE 4.16 – Intensité réfléchie dans le modèle d'exciton saturable avec les paramètres obtenus par la mesure de PL ( $E = 1.362$  eV). La ligne en trait plein représente le résultat du modèle, la ligne en pointillés représente le cas d'un exciton non saturable, la ligne en tirets représente la cavité nue.

apparaît à  $I_{0,in} = 70$  mW, d'où on déduit :  $I_S = 1.4$  W.

Notons que dans l'expérience le faisceau d'excitation est gaussien, ce qui entraîne une dépendance du phénomène avec la position sous la tache d'excitation. On le retrouve sur les images du spot réfléchi, comme l'illustrent les profils repro-

duits sur la figure 4.17. La figure 4.18 présente le résultat du modèle présenté dans cette partie en considérant un profil gaussien pour l'excitation. Dans le modèle comme dans l'expérience, le faisceau réfléchi est gaussien à très basse puissance (dans l'expérience, les pieds de la gaussienne sont effacés par le traitement automatique réalisé par la webcam utilisée). Quand la puissance augmente, le profil s'aplatit (57 mW), puis deux creux se forment dans le profil, d'abord superposés, puis clairement distincts à forte puissance. Ces creux correspondent au minimum local de la figure 4.16 pour  $I_{0,in}/I_S = 0.05$ .

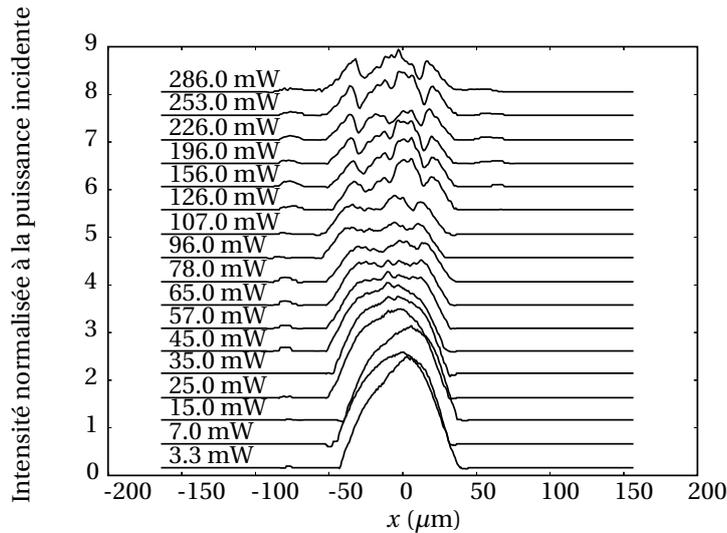


FIGURE 4.17 – Profils spatiaux d'intensité réfléchie expérimentaux. Le spot incident a un profil gaussien. (Note : le traitement réalisé par la caméra utilisée pour visualiser ces profils a tendance à apodiser les gaussiennes en soustrayant une constante sur chaque image.) Les profils sont normalisés, et décalés pour une meilleure lisibilité.

### 4.5.3 Diffusion Rayleigh

Comme à basse température (voir partie 4.1), le désordre aux interfaces entre les paires de couche dans les miroirs de Bragg est responsable d'une diffusion élastique, dite "diffusion Rayleigh", qui provoque un changement de vecteur d'onde des photons qui pénètrent dans la cavité. Ce désordre provient du désaccord de maille entre les couches de semiconducteurs. Ce désaccord se relaxe en provoquant des ondulations des interfaces, qui reprennent dans une certaine mesure la structure cristalline sous-jacente. Cette relaxation de la contrainte est désignée par le terme "mosaïcité". Finalement, l'efficacité de la diffusion n'est pas isotrope, mais suit le caractère anisotrope de la relaxation de la contrainte de désaccord de maille, qui est plus marquée le long des axes cristallins.

Ainsi, dans nos microcavités multiples, on observe qu'une partie de la lumière est diffusée vers les autres modes de cavité à la même énergie, et prend couramment la forme d'une émission en croix dans le plan de Fourier, correspondant à la diffusion Rayleigh.

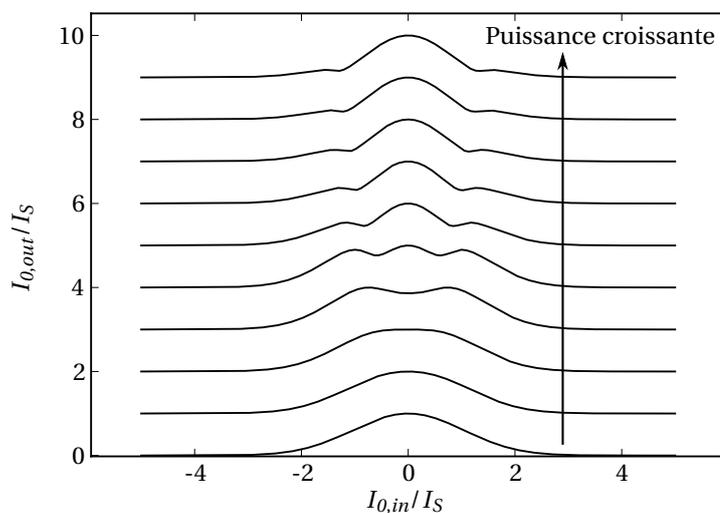


FIGURE 4.18 – Profils spatiaux d’intensité réfléchie dans le modèle d’exciton saturable avec les paramètres obtenus par la mesure de PL ( $E = 1.362$  eV). Le spot incident a un profil gaussien. Les profils sont normalisés, et décalés pour une meilleure lisibilité. On a représenté

La figure 4.19 illustre cette émission en croix, visualisée dans le plan de Fourier, pour une excitation résonante sur le bas de bande du mode de cavité supérieur.

Cette émission est formée de couples de points opposés sur l’anneau Rayleigh, et de plus elle apparaît à partir d’un seuil en puissance de pompe (détailé dans le paragraphe suivant et la figure 4.21). Au premier abord, on pourrait donc identifier cette émission à de l’oscillation paramétrique optique qui, comme on l’a vu au chapitre 1, apparaît à partir d’un seuil en puissance (équation 1.44), et doit vérifier l’accord de phase géométrique en conservant le vecteur d’onde, ce qui donnerait effectivement des points opposés sur l’anneau Rayleigh en pompant en incidence normale. Pourtant, pour de multiples raisons, il semble plus logique de conclure qu’il ne s’agit pas d’oscillation paramétrique. Parmi ces raisons, on observe expérimentalement l’absence de conservation de l’énergie et du vecteur d’onde quand la pompe n’est plus à  $0^\circ$ <sup>3</sup> ; la présence de corrélations d’intensité entre tous les points de la croix, même entre points non-opposés, alors que l’oscillation paramétrique suppose uni-

3. Le cas extrême de non-conservation du vecteur d’onde est observé en pompant *directement sur l’anneau*. On observe alors une émission *en incidence normale*, qui présente elle aussi un seuil du même ordre de grandeur. Seul un processus de diffusion Rayleigh permet d’interpréter la présence de cette émission en incidence normale. La diffusion paramétrique exige quant à elle la conservation du vecteur d’onde, ce qui supposerait la présence d’un complémentaire à un vecteur d’onde où il n’y a pas de mode de cavité, donc le seuil en puissance correspondant devrait être très largement plus élevé, comme lorsqu’on passe d’un oscillateur triplement résonnant à un oscillateur doublement résonnant.

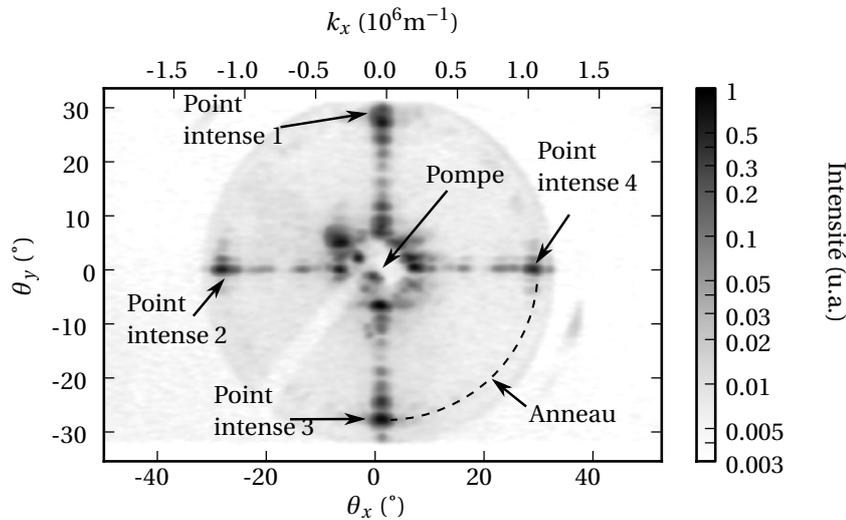


FIGURE 4.19 – Image dans le plan de Fourier de l'émission d'une microcavité double excitée en incidence normale, en résonance avec le bas de bande du mode de cavité supérieur, à 200 mW. On note la présence de l'anneau de diffusion Rayleigh que nous avons mis en évidence par un quart de cercle en tirets. Sur cet anneau, quatre points sont particulièrement intenses aux intersections avec une croix passant par la normale. Le pompe réfléchiée à  $0^\circ$  est masquée.

quement des corrélations entre paires de points opposés<sup>4</sup>; l'observation du seuil sur une très large gamme de désaccords incluant le désaccord nul, contrairement au modèle d'OPO présenté dans la dernière partie de ce chapitre<sup>5</sup>.

#### Dépendance en puissance de la diffusion Rayleigh

La diffusion Rayleigh est issue du désordre dans les miroirs, qui est une constante de la structure des interfaces. C'est un processus linéaire. Dans l'échantillon, il y a une importante surtension dans la cavité. De plus, le champ pénètre dans les miroirs de part et d'autre de la cavité, sur une longueur typique dite longueur de pénétration (voir équation 1.61). La figure 4.20 donne la distribution de l'intensité du champ électrique dans une cavité simple, où apparaît la surtension dans la cavité au milieu de la structure, et le champ exponentiellement décroissant de part et d'autre de la cavité. Autrement dit, les photons traversent un grand nombre de fois cette zone

4. La présence de corrélations entre tous les faisceaux diffusés peut s'expliquer par le processus suivant. La diffusion Rayleigh agit à la manière d'une lame séparatrice pour ce faisceau de pompe : une portion des photons de ce faisceau de pompe change de vecteur d'onde. Or, les excitons se comportent comme une source de bruit pour tous les champs électriques dans la structure, en particulier pour la pompe. Les faisceaux diffusés héritent donc d'une portion du bruit en excès de la pompe, et présentent une corrélation entre eux, de la même façon que le font les faisceaux sortants d'une lame séparatrice éclairée par un faisceau bruité (voir partie 1.6.4).

5. On a aussi noté que les intensités moyennes de deux points lumineux opposés sur l'anneau varient indépendamment avec la position sur l'échantillon. On a tracé l'intensité d'un point en fonction de l'intensité du point opposé. Dans le cas d'un régime OPO, les intensités sont censées être équilibrées, donc un tel graphe devrait donner une droite passant par l'origine. Or, on obtient en fait un nuage de points sans structure apparente.

centrale de la structure. C'est donc sur les interfaces qui se trouvent dans cette zone de forte intensité qu'aura lieu l'essentiel de la diffusion Rayleigh. Plus l'intensité intracavité est grande, plus la diffusion Rayleigh sera importante.

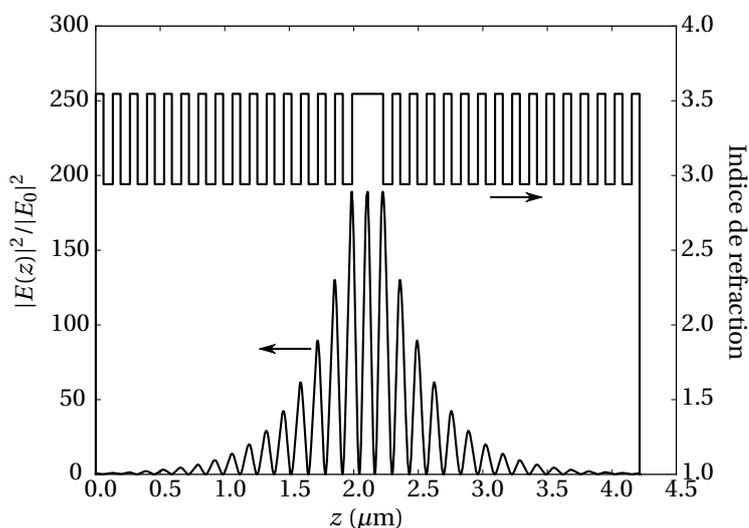


FIGURE 4.20 – Simulation par la méthode des matrices de transfert du profil spatial du champ électrique dans une structure réelle de microcavité simple, excitée en incidence normale et en résonance. Le profil de l'indice de réfraction est indiqué en superposition. On note la grande surtension dans la cavité et dans les couches voisines.

Au premier ordre, on peut donc considérer que le nombre de photons diffusé par ce processus Rayleigh est proportionnel à l'intensité intracavité. Avec le modèle de cavité que nous avons établi et vérifié ci-dessus, il est aisé de prévoir l'intensité intracavité d'un échantillon en fonction des paramètres d'excitation, et de la comparer avec les résultats expérimentaux.

L'intensité des 4 points intenses sur l'anneau Rayleigh (les quatre points cardinaux de l'anneau sur la figure 4.19) en fonction de la puissance présente un comportement non-linéaire avec un seuil. La figure 4.21 reproduit une courbe typique obtenue dans l'expérience, dans les mêmes conditions que la mesure de réflectivité de la figure 4.15. En-dessous de 60 mW, les 4 points cardinaux de l'anneau ont une très faible intensité, puis au-delà d'un seuil net à 60 mW leur intensité augmentent fortement, linéairement.

Le modèle de l'exciton saturable abordé dans cette partie nous permet de calculer l'intensité intracavité en fonction de la puissance incidente. La figure 4.22 illustre le résultat de ce modèle avec les mêmes paramètres que dans la figure 4.16. Quand la puissance incidente augmente, la transition excitonique en vient à saturer, ce qui diminue les pertes dans la cavité, augmente la finesse, et augmente donc la surtension dans la cavité. On note un seuil à  $\frac{I_{0,in}}{I_S} \approx 0.04$ , suivie d'une augmentation linéaire, comme dans l'expérience. L'identification des seuils donne  $I_S = 1.5$  W, ce qui est parfaitement compatible avec la mesure de réflectivité du paragraphe précédent.

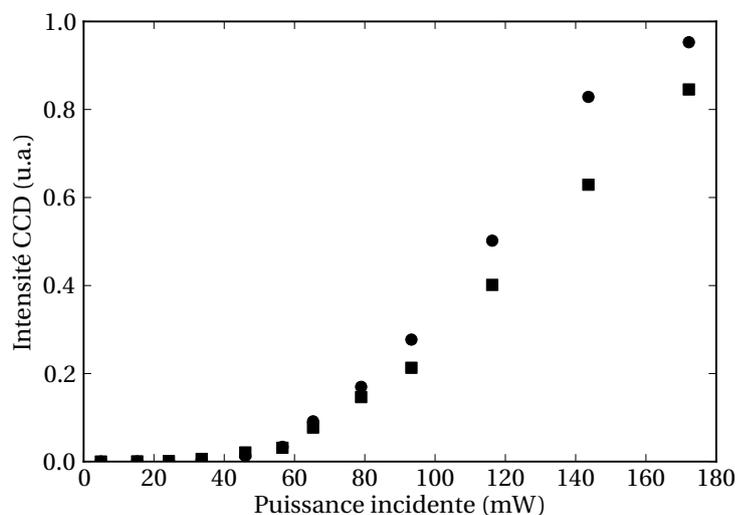


FIGURE 4.21 – Intensité de l'émission d'une microcavité double excitée en incidence normale, pour les deux points (• et ■) opposés sur l'anneau, sur l'axe horizontal (points 2 et 4 de la figure 4.19). On note un seuil à 60 mW.

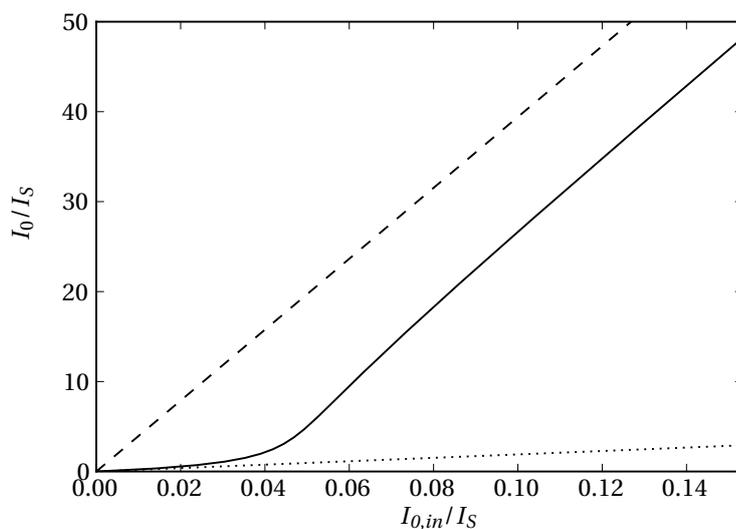


FIGURE 4.22 – Intensité intracavité dans le modèle d'exciton saturable, à laquelle la diffusion Rayleigh est proportionnelle. Les paramètres sont ceux obtenus par la mesure de PL ( $E = 1.362$  eV). La ligne en trait plein représente le résultat du modèle, la ligne en pointillés représente le cas d'un exciton non saturable, la ligne en tirets représente la cavité nue.

On conclut donc que le modèle du système à 2 niveaux en cavité permet très bien d'expliquer le comportement en réflectivité ainsi que la non-linéarité de l'émission

Rayleigh dans notre microcavité double, et nous a permis d'estimer l'intensité intracavité de saturation :  $I_S \approx 1.5$  W.

#### 4.5.4 Oscillation paramétrique optique

Avec l'échantillon présenté dans ce chapitre, nous n'avons pas été en mesure d'observer ni de régime d'amplification ni d'oscillation paramétrique. Nous cherchons donc ici à partir du modèle du système à 2 niveaux en cavité si l'oscillation paramétrique est accessible dans notre échantillon, et si elle ne l'est pas, comment mettre au point un échantillon fonctionnel.

ABRAMS & LIND [34] ont calculé qu'un système à deux niveaux peut se comporter comme un milieu à gain dans un certain régime de paramètres d'intensité et de désaccord. CHEMLA *et al.* [22] ont quant à eux observé expérimentalement un signal de mélange de quatre ondes dégénéré dans des structures composées de puits quantiques multiples (plus de 60 puits de GaAs dans AlGaAs) à température ambiante. On s'attend donc à voir l'existence de régimes d'amplification et d'oscillation dans une microcavité.

Nous reprendrons ici l'approche du mélange dégénéré utilisée par ABRAMS & LIND [34] et l'appliquerons à un système à deux niveaux placé dans un résonateur en anneau (figure 4.23) qui servira à modéliser la situation représentée sur la figure 4.24.

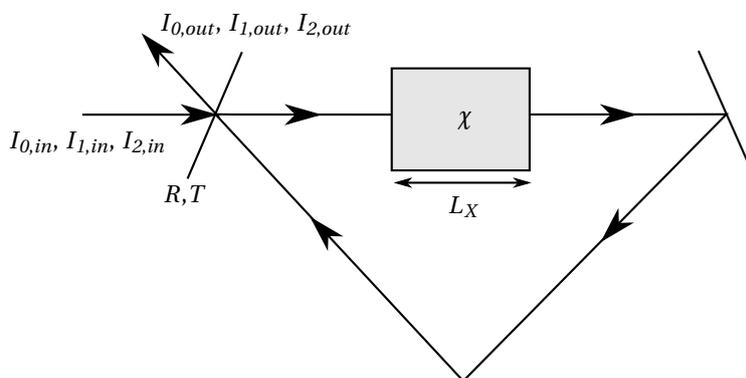


FIGURE 4.23 – Schéma correspondant au modèle de l'expérience d'oscillation paramétrique d'un système à 2 niveaux dans une cavité.

Il s'agit donc en premier lieu d'étudier l'équation de propagation dans un milieu modélisé par la susceptibilité d'un système à 2 niveaux, et parcouru par un champ  $E$  qui est la somme de 3 champs complexes  $E_0$  (pompe),  $E_1$  (signal) et  $E_2$  (complémentaire), tous les trois à la même énergie  $\omega$  (figure 4.23). On écrira  $E = E_0 + \Delta E$ ,  $\Delta E = E_1 + E_2$ , en faisant l'hypothèse  $|\Delta E| \ll |E_0|$ . La polarisation  $P$  totale dans le

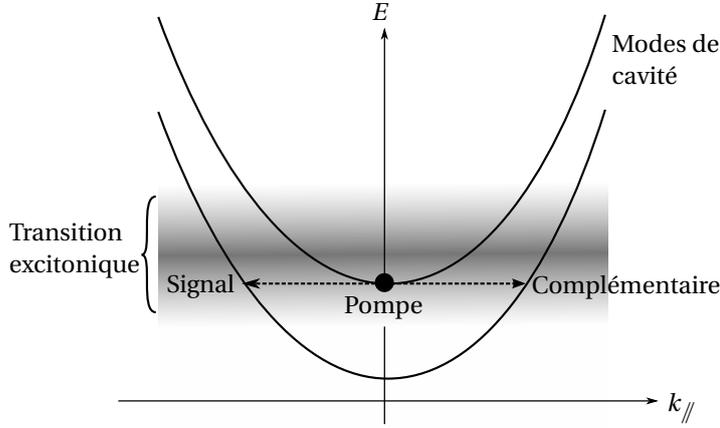


FIGURE 4.24 – Dispersion des modes de cavité et de l'exciton, et processus OPO

puits quantique s'écrit :

$$P = \epsilon_0 \chi(E) E = \epsilon_0 \chi(E_0 + \Delta E)(E_0 + \Delta E) \quad (4.17)$$

$$\chi(E) = \frac{-2\alpha_0}{\omega/c} \frac{\delta - i}{1 + \delta^2 + |E/E_S|^2} \quad (4.18)$$

On développe ensuite  $P$  au premier ordre en  $\Delta E$  :

$$P \approx \epsilon_0 \chi(E_0) E_0 + \epsilon_0 \chi(E_0) \Delta E - \epsilon_0 \frac{\chi(E_0)}{1 + \delta^2 + |E_0/E_S|^2} \frac{E_0(E_0 \Delta E^* + E_0^* \Delta E)}{|E_S|^2} \quad (4.19)$$

On introduit les enveloppes  $A_i$  en écrivant  $E_i(z, t) = A_i(z) e^{i(\omega t - k_i z)}$ ,  $k_i$  étant défini réel. Sur le signal et le complémentaire, l'équation de propagation produit le système d'équation suivant :

$$\frac{dA_1}{dz} = \alpha A_1 + i\kappa A_2^* \quad (4.20a)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \alpha A_2 + i\kappa A_1^* \quad (4.20b)$$

où on a défini les grandeurs suivantes :

$$\alpha = \frac{1}{2k} \frac{\omega^2}{c^2} \Im(\chi(E_0)) \left(1 - \frac{|E_0|^2}{|E_S|^2 (1 + \delta^2 + |E_0/E_S|^2)}\right) \quad (4.21)$$

$$\kappa = \frac{1}{2k} \frac{\omega^2}{c^2} \chi(E_0) \frac{E_0^2}{|E_S|^2 (1 + \delta^2 + |E_0/E_S|^2)} \quad (4.22)$$

$$k_1 = k_2 = k = \frac{\omega n}{c} \quad (4.23)$$

$$n = 1 + \Re(\chi(E_0)) \left(1 - \frac{|E_0|^2}{|E_S|^2 (1 + \delta^2 + |E_0/E_S|^2)}\right) \quad (4.24)$$

Comme nous l'avons présenté dans le chapitre 1, l'oscillation paramétrique apparaît quand la *condition de bouclage* est vérifiée, c'est-à-dire si le système suivant possède des solutions non-nulles :

$$A_1(L_X)r_1e^{i\Phi_1} = -A_1(0) \quad (4.25a)$$

$$A_2(L_X)r_2e^{i\Phi_2} = -A_2(0) \quad (4.25b)$$

Pour en chercher les solutions, on fait des hypothèses similaires à celles présentées au chapitre 1 : on linéarise les équations 4.20a et 4.20b décrivant l'évolution spatiale des champs  $A_1$  et  $A_2$  dans le puits quantique ; si la réflectivité du résonateur est grande, on peut écrire  $r_i \approx 1 - \frac{T_i}{2}$  où  $T_i$  est le coefficient de transmission en intensité du résonateur ; on supposera aussi que les transmissions sont identiques pour le signal et le complémentaire :  $T_2 = T_3 = T$  ; enfin, supposons la cavité est à la résonance, c'est-à-dire que les déphasages  $e^{i\phi_i}$  valent tous exactement  $-1$ . Alors, le système ci-dessus a des solutions non-nulles dès que :

$$|\kappa|^2 L_X^2 = \left( \frac{T}{2} + \alpha L_X \right)^2 \quad (4.26)$$

Cette équation est typiquement de la forme "gain = pertes". Notons qu'à la fois le gain  $|\kappa|$  et les pertes  $\alpha$  dépendent de l'intensité  $|E_0|^2$  de la pompe.

Pour étudier la possibilité d'observer l'oscillation, on considère le rapport "gain sur pertes"  $R$  :

$$R = \frac{|\kappa|^2 L_X^2}{\left( \frac{T}{2} + \alpha L_X \right)^2} \quad (4.27)$$

Si, en fonction des paramètres expérimentaux, ce rapport atteint ou dépasse 1, on en conclut que l'oscillation est possible. Avant d'évaluer la valeur de ce rapport avec nos paramètres expérimentaux, ce que nous ferons plus bas, introduisons l'effet du *walk-off* qui a tendance à augmenter les pertes dans l'interaction entre plusieurs ondes.

### Walk-off

Le modèle présenté ci-dessus suppose que les 3 champs sont des ondes planes, donc d'extension transverse infinie. En pratique, le spot de pompe est gaussien, et ainsi l'interaction a lieu dans une région limitée. Or, comme le signal et le complémentaire se propagent avec des angles non-nuls et opposés, les photons correspondants s'éloignent de la zone où la pompe est présente et, plus rapidement encore, les photons signal s'éloignent des photons complémentaire.

BOYD & KLEINMAN [35] ont étudié un phénomène similaire appelé *walk-off*. Il s'agit du problème de la propagation des faisceaux créés par une interaction en  $\chi^{(2)}$  quand l'accord de phase est assuré par la biréfringence. Dans ce cas, le faisceau de pompe et le faisceau créé par la conversion paramétrique (par exemple le doublage de fréquence) ont une polarisation différente pour que leurs indices de réfraction coïncident. cependant, la biréfringence introduit aussi l'effet de double-réfraction : même si les ondes sont colinéaires, les vecteurs de Poynting des faisceaux pointent dans des directions différentes, séparés par l'angle de double-réfraction. À cause de

cet écart angulaire entre le faisceau pompe et le faisceau produit par la conversion paramétrique, la zone où ces faisceaux sont superposés est de taille finie. La longueur d'interaction entre ces faisceaux est donc réduite par rapport à la longueur de cohérence qui ne tient compte que de l'accord de phase. Ce walk-off est caractérisé par une longueur d'ouverture (*aperture length*)  $L_a = \sqrt{\pi} \frac{w_0}{\rho}$ , où  $w_0$  est le waist du faisceau, et  $\rho$  est l'angle de double-réfraction. Dès que  $L_a$  devient de l'ordre de la longueur du cristal, ou plus petit, le walk-off devient limitant. Par exemple, pour  $L_a \gg L$ , l'intensité de génération de seconde harmonique varie comme  $I_{2\omega} \propto L^2$ . Par contre, si  $L_a \ll L$ , cette intensité varie comme  $I_{2\omega} \propto L_a^2$ .

Dans notre cas, on peut définir également une longueur d'ouverture  $L_a$  à partir du waist  $w_0$  des faisceaux, et de l'écart angulaire  $\Delta\rho$  entre le signal et le complémentaire. Dans notre montage, le waist vaut  $w_0 = 40 \mu\text{m}$ . L'écart angulaire à l'extérieur de la cavité vaut  $\Delta\rho_{ext} \simeq 2 \times 30^\circ$ , ce qui correspond à un écart angulaire dans la cavité de  $\Delta\rho \simeq 16^\circ$ , compte-tenu des indices optiques. On trouve donc  $L_a \simeq 2.5 \times 10^2 \mu\text{m}$ . Cette grandeur  $L_a$  doit être comparée à la longueur effective d'interaction, qui correspond à la longueur de la cavité multipliée par le nombre d'aller-retour dans celle-ci. Comme on peut le voir notamment sur la figure 4.22, la cavité nue produit une surtension d'environ 600, on estime donc le nombre d'aller-retour à cette même valeur :  $N \simeq 600$ . Chaque cavité en GaAs est une cavité  $\lambda$ , et le champ pénètre dans les miroirs sur chaque côté de la cavité sur une profondeur typique de  $2.5\lambda$  (cf équation 1.61)<sup>6</sup>. Ceci donne donc une longueur effective d'interaction  $L_{eff} = NL_{cav} = N \frac{(1 + 2 \times 2.5)\lambda}{n_{GaAs}} \simeq 9.8 \times 10^2 \mu\text{m}$ . On trouve ainsi  $L_a \simeq 0.25L_{eff}$ , ce qui signifie que le walk-off contribue plus aux pertes que la transmission des miroirs !

Pour rendre compte quantitativement de cet effet du walk-off dans le calcul du seuil OPO, on se propose d'introduire un terme de pertes supplémentaire. Dans l'expression du rapport "gain sur pertes",  $\frac{T}{2} + \alpha L_X$  représente les pertes en amplitude pour un tour dans la cavité. Estimons la perte en amplitude due au walk-off, en un tour, à  $\frac{L_{cav}}{L_a}$ , et ajoutons-là à ce bilan des pertes. Le rapport "gain sur pertes" corrigé s'écrit donc :

$$R_{corrigé} = \frac{|\kappa|^2 L_X^2}{\left(\frac{T}{2} + \frac{L_{cav}}{L_a} + \alpha L_X\right)^2} \quad (4.28)$$

Dans notre configuration,  $\frac{L_{cav}}{L_a} \simeq 6.6 \times 10^{-3}$ , tandis que  $\frac{T}{2} \simeq 5.1 \times 10^{-3}$

### Résultats du modèle d'OPO

La figure 4.25 reproduit l'évolution de ce rapport  $R_{corrigé}$  en fonction de la puissance de pompe intracavité, les paramètres étant ceux de l'échantillon selon les mesures effectuées dans la partie 4.4.2, et pour un désaccord (optimal, comme indiqué ci-dessous) entre l'énergie de pompe et l'exciton de +1 meV.

À faible puissance, le rapport "gain sur pertes" augmente car le gain  $|\kappa|^2$  varie comme  $|E_0|^4$ . Au-delà d'une certaine puissance, la saturation de l'exciton se fait sen-

6. Chaque mode est délocalisé sur les 2 cavités, mais ceci ne rajoute pas un facteur 2 sur la longueur totale : ceci vient du fait que le photon a une probabilité  $\frac{1}{2}$  d'être dans chacune des cavités.

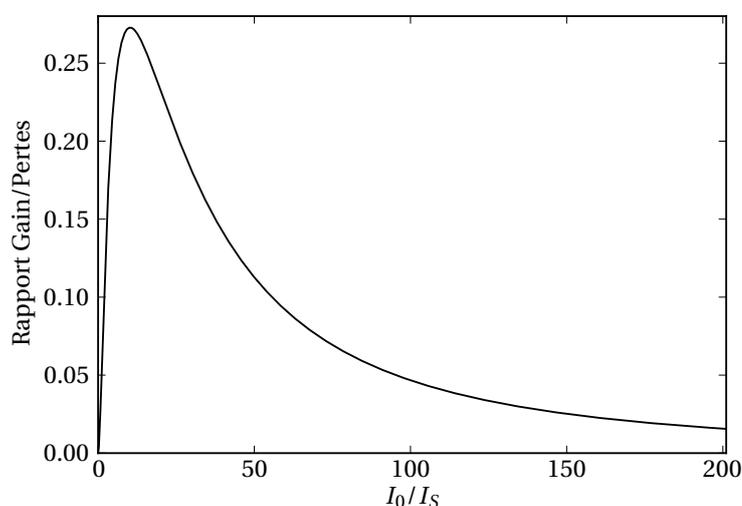


FIGURE 4.25 – Rapport “gain sur pertes” en fonction de la puissance de pompe intracavité, avec les paramètres de l’échantillon présenté dans ce chapitre, au désaccord optimal de +1 meV.

tir, ce qui a deux conséquences opposées : l’absorption  $\alpha$  diminue, ce qui aurait tendance à faciliter l’oscillation, mais le gain  $|\kappa|$  diminue également, ce qui a l’effet contraire. Finalement les pertes deviennent limitées par la transmission  $T$  caractérisant le résonateur, tandis que le gain tend vers 0, ce qui fait que le rapport “gain sur pertes” tend vers 0 également. Sur toute la gamme de puissance intracavité, le rapport “gain sur pertes” atteint un maximum de 0.27, inférieur à 1. Ainsi, le modèle présenté ici ne prévoit effectivement pas d’oscillation paramétrique dans notre échantillon.

Expérimentalement, avec un échantillon donné, on peut varier le désaccord  $\delta$ . La figure 4.26 reproduit la variation du rapport “gain sur pertes” en fonction de ce désaccord. Le désaccord optimal se trouve à  $\pm 1$  meV de l’énergie de l’exciton, mais jamais le gain ne dépasse les pertes.

Expérimentalement, toujours sans changer d’échantillon, on peut varier la taille  $w_0$  du spot, ce qui change la longueur d’ouverture  $L_a$  qui intervient dans le terme de walk-off. La figure 4.27 reproduit la variation du rapport “gain sur pertes” en fonction du désaccord  $\delta$ , pour des rapports  $\frac{L_{cav}}{L_a}$  variant de  $6.6 \times 10^{-3}$  (nos conditions expérimentales) à  $6.6 \times 10^{-4}$  (ce qui correspond à un waist 10 fois plus grand). Dans tous les cas, même si diminuer le walk-off améliore la situation, le rapport “gain sur pertes” reste en-dessous de 1.

Au moment de la conception de la structure, on peut chercher à augmenter le nombre de paires de couches formant les miroirs pour augmenter leur réflectivité. La figure 4.28 reproduit la variation du maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction du désaccord  $\delta$ , pour des largeurs de cavité  $\Gamma_C$  décroissantes (on a  $T = \pi \frac{\Gamma_C}{E_0}$ ). Même avec une largeur de 0.11 meV, soit 10 fois moins que celle de notre échantillon, le rapport reste plus petit que 1. C’est en fait le terme de pertes du au

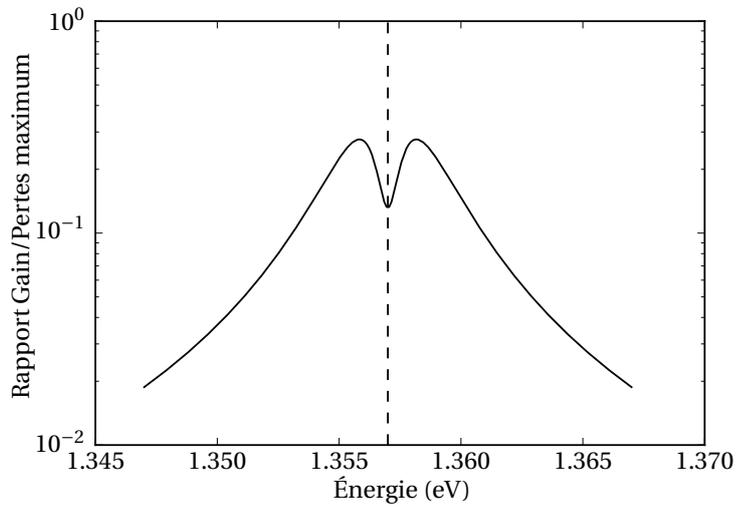


FIGURE 4.26 – Maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction de l’énergie d’excitation, avec les paramètres de l’échantillon présenté dans ce chapitre. La transition excitonique se trouve à 1.357 eV.

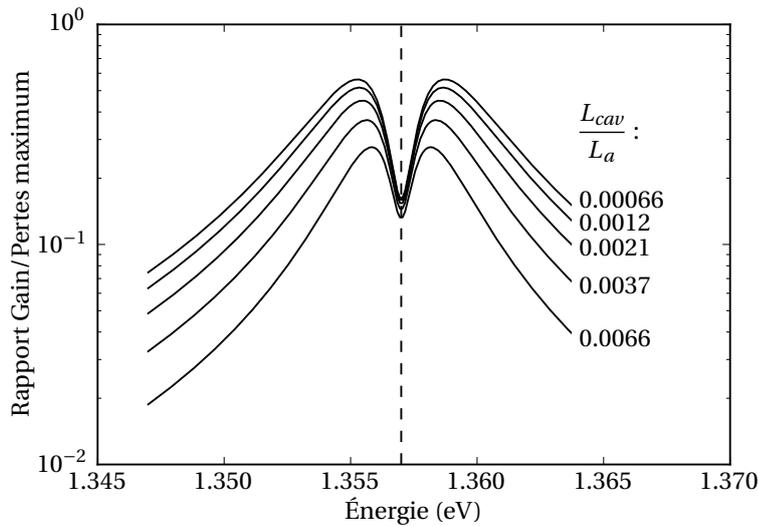


FIGURE 4.27 – Maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction de l’énergie d’excitation, avec les paramètres de l’échantillon présenté dans ce chapitre, mais en variant la valeur du terme de walk-off  $\frac{L_{cav}}{L_a}$ .

walk-off qui domine alors.

Enfin, on peut aussi vouloir augmenter le nombre  $N$  de puits quantiques pour augmenter la non-linéarité. Dans notre modèle, ceci correspond à augmenter la longueur du milieu non-linéaire, de sorte que  $L_X = NL_{X,0}$ , où  $L_{X,0}$  est l’épaisseur d’un

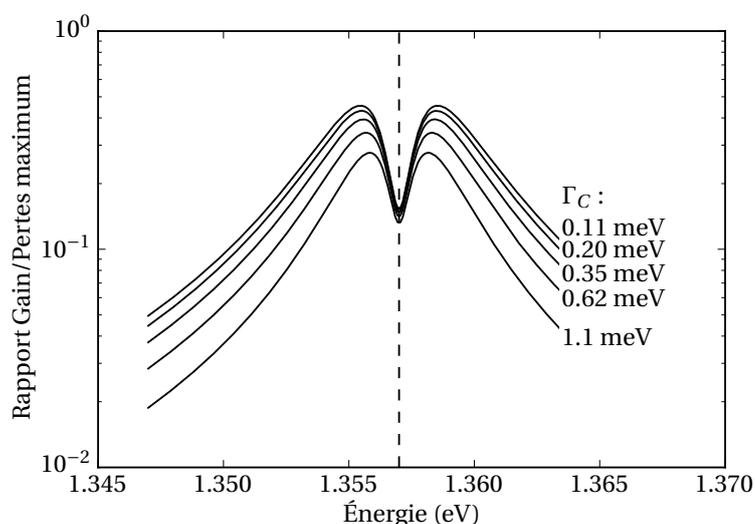


FIGURE 4.28 – Maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction de l’énergie d’excitation, avec les paramètres de l’échantillon présenté dans ce chapitre, mais avec des largeurs  $\Gamma_C$  variables comprises entre 1.1 meV (la largeur de notre échantillon) et 0.11 meV.

puits unique. La figure 4.29 reproduit la variation du maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction du nombre de puits quantiques. Ainsi, d’après ce modèle, un échantillon similaire à celui que nous avons étudié, mais contenant 24 puits quantiques, pourrait présenter le phénomène d’oscillation paramétrique.

#### 4.5.5 Échantillon “idéal” pour l’OPO

Supposons qu’on fabrique un échantillon avec le même nombre de paires de couches dans les miroirs, mais un total de 24 puits (ce qui est tout à fait réaliste, puisque dans nos échantillons de fils, il y a effectivement 12 puits dans une cavité), et qu’on diminue l’angle d’émission du signal et du complémentaire d’un facteur 2 ( $\pm 15^\circ$ ) pour réduire le problème du walk-off. La figure 4.30 reproduit la variation du rapport “gain sur pertes” en fonction du désaccord. Ainsi, pour un désaccord (absolu) compris entre 1.3 et 5.0 meV, l’oscillation paramétrique devient possible.

En calculant le rapport “gain sur pertes” en fonction de la puissance intracavité, comme on l’a fait dans la figure 4.25, on peut repérer l’intensité de seuil  $I_{0,seuil}$  intracavité, qui correspond à l’intensité où le rapport passe au-dessus de 1. On peut également noter l’intensité où l’oscillation paramétrique disparaît, c’est-à-dire l’intensité où le rapport repasse en-dessous de 1. La figure 4.31 reproduit ces deux grandeurs en fonction du désaccord. Ainsi, le seuil optimal est obtenu à un désaccord de  $\pm 1.7$  meV, et l’intensité intracavité de seuil vaut alors 15 fois l’intensité de saturation. Estimons quelle serait la puissance incidente correspondante. D’après les mesures de réflectivité et de l’émission Rayleigh, on estime dans notre échantillon que l’intensité de saturation est approximativement de 1.5 W. Si on se réfère à la courbe 4.22, on atteint  $\frac{I_0}{I_S} = 15$  pour  $\frac{I_{0,in}}{I_S} \approx 0.07$ . On en déduit finalement que la puissance

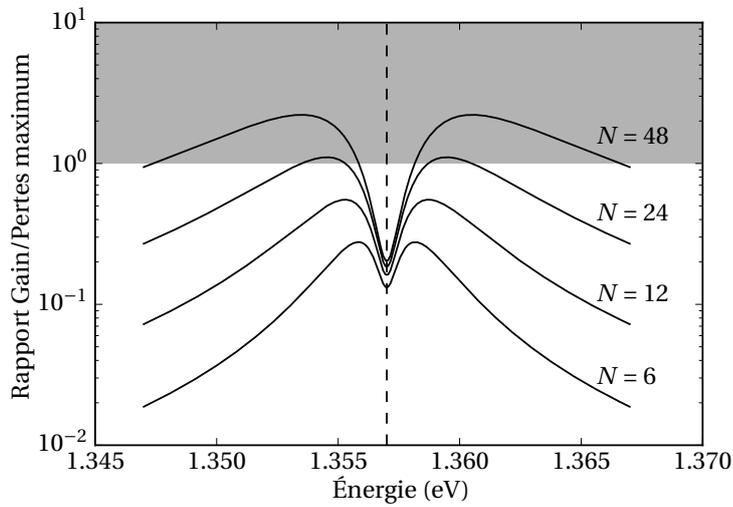


FIGURE 4.29 – Maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction de l’énergie d’excitation, avec les paramètres de l’échantillon présenté dans ce chapitre, mais avec un nombre  $N$  de puits quantique variable.

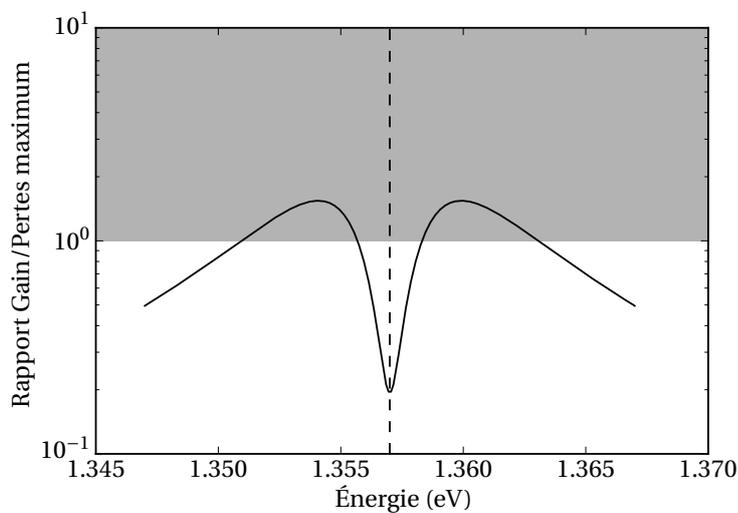


FIGURE 4.30 – Maximum du rapport “gain sur pertes” en fonction de l’énergie d’excitation, pour un échantillon idéal contenant 24 puits et conçu pour que le signal et le complémentaire sortent à  $\pm 15^\circ$ .

incidente au seuil serait  $I_{0,in} \approx 100$  mW. Cette valeur est tout à fait accessible par notre laser de laboratoire, et est même accessible par une diode laser, ce qui permet d’envisager la fabrication d’un dispositif intégré.

En conclusion, on pourra retenir que, même si l’échantillon étudié au cours de

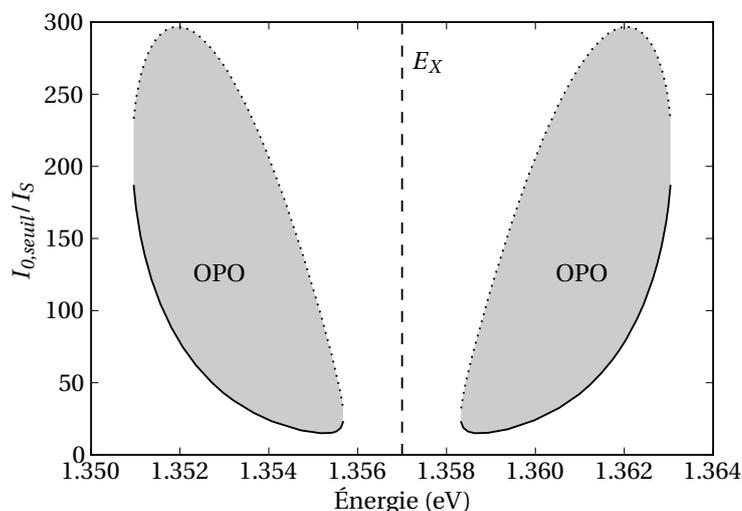


FIGURE 4.31 – Intensité intracavité au seuil OPO (en traits pleins) et quand l'OPO s'arrête (pointillés), en fonction de l'énergie, pour un échantillon idéal contenant 24 puits et conçu pour que le signal et le complémentaire sortent à  $\pm 15^\circ$ .

cette thèse ne présente pas les caractéristiques nécessaires à l'obtention de l'oscillation paramétrique, il nous a permis de déterminer les facteurs importants pour espérer l'observer, et il est tout à fait envisageable d'en fabriquer un qui remplisse ces conditions, notamment en augmentant le nombre de puits quantiques, et en réduisant l'angle d'émission du signal et du complémentaire.

## Conclusion

Nous avons montré en début de ce chapitre 4 que l'oscillation paramétrique dé-générée en énergie existe dans les microcavités couplées, à basse température.

L'étude d'une microcavité double à température ambiante a pris la forme d'une étude de faisabilité de l'oscillation paramétrique dans cette structure, à température ambiante. Les résonances excitoniques des puits quantiques d'InGaAs sont nettement plus larges qu'aux températures cryogéniques, ce qui rend les conditions d'observation de l'oscillation plus contraignantes. En particulier, l'échantillon que nous avons étudié n'a pas présenté de régime d'oscillation. Néanmoins, les non-linéarités de saturation sont bel-et-bien présentes et suffisamment efficaces pour atteindre le régime d'oscillation dans un échantillon conçu notamment avec suffisamment de puits.

Notons également que d'autres types de puits pourraient être utilisés pour augmenter la non-linéarité, comme les puits de GaN, qui ont une force d'oscillateur plus grande [36]. Ainsi, les puits en GaN permettent même l'observation du couplage fort à température ambiante. Ceci a lieu au prix d'un processus de fabrication plus délicat qui rend les échantillons habituellement de moins bonne qualité que ceux composés de puits d'InGaAs.

On pourrait aussi envisager de rechercher l'OPO à température ambiante dans

des fils photoniques. Ces fils ont l'avantage d'avoir des finesses plus grandes que les cavités couplées, à épaisseur totale égale. Néanmoins, la levée de dégénérescence de polarisation que nous avons exploitée aux températures cryogéniques dans le chapitre 3 est a priori trop faible pour être utilisable à température ambiante, puisqu'elle est essentiellement due aux contraintes mécaniques anisotropes apparaissant lors du refroidissement. Nous n'aurions donc pas le bénéfice de l'oscillation en polarisation croisée avec le pompe à température ambiante.

Finalement, les microcavités couplées sont une structure prometteuse pour obtenir une source compacte réalisant l'oscillation paramétrique à température ambiante, et peut-être à terme une source de faisceaux jumeaux. Une fois réalisé, un tel oscillateur paramétrique pourrait même être associé à un dispositif d'injection électrique pour réaliser un oscillateur tout-intégré.

## Références

1. DIEDERICHS, C. *Oscillation paramétrique optique et génération de photons jumeaux dans des microcavités de semiconducteurs* thèse de doct. (2007).
2. DIEDERICHS, C., TAJ, D., LECOMTE, T., CIUTI, C., ROUSSIGNOL, P., DELALANDE, C., LEMAÎTRE, A., LARGEAU, L., MAUGUIN, O., BLOCH, J., LEYDER, C., BRAMATI, A., GIACOBINO, E. & TIGNON, J. Parametric generation of twin photons in vertical triple microcavities. *Comptes Rendus Physique* **8**, 1198–1204 (2007).
3. DIEDERICHS, C., TIGNON, J., DASBACH, G., CIUTI, C., LEMAÎTRE, A., BLOCH, J., ROUSSIGNOL, P. & DELALANDE, C. Parametric oscillation in vertical triple microcavities. *Nature* **440**, 904–907 (2006).
4. HAYES, G. R., HAACKE, S., KAUER, M., STANLEY, R. P., HOUDRÉ, R., OESTERLE, U. & DEVEAUD, B. Resonant Rayleigh scattering versus incoherent luminescence in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **58**, R10175 (1998).
5. WHITTAKER, D. M. Resonant Rayleigh scattering from a disordered microcavity. *Physical Review B* **61**, R2433 (2000).
6. SHCHEGROV, A. V., BLOCH, J., BIRKEDAL, D. & SHAH, J. Theory of Resonant Rayleigh Scattering from Semiconductor Microcavities : Signatures of Disorder. *Physical Review Letters* **84**, 3478 (2000).
7. HEINKE, H., MÖLLER, M. O., HOMMEL, D. & LANDWEHR, G. Relaxation and mosaicity profiles in epitaxial layers studied by high resolution X-ray diffraction. *Journal of Crystal Growth* **135**, 41–52 (1994).
8. ONG, H. C., ZHU, A. X. E. & DU, G. T. Dependence of the excitonic transition energies and mosaicity on residual strain in ZnO thin films. *Applied Physics Letters* **80**, 941–943 (2002).
9. TOURE, A., BCHETNIA, A., LAFFORD, T. A., BENZARTI, Z., HALIDOU, I., BOUGRIOUA, Z. & JANI, B. E. Mosaicity and stress effects on luminescence properties of GaN. *physica status solidi (a)* **205**, 2042–2046 (2008).
10. BJORKHOLM, J. E. Frequency control of a pulsed optical parametric oscillator by radiation injection. *Applied Physics Letters* **15**, 171 (1969).
11. BARNES, N. P. & BARNES, J. C. Injection seeding. I. Theory. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **29**, 2670–2683 (1993).

12. BARNES, J., BARNES, N., WANG, L. & EDWARDS, W. Injection seeding. II. Ti:Al/sub 2/O/sub 3/ experiments. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **29**, 2684–2692 (1993).
13. KINOSHITA, S. & IGA, K. Circular buried heterostructure (CBH) GaAlAs/GaAs surface emitting lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **23**, 882–888 (1987).
14. GOURLEY, P. L. & DRUMMOND, T. J. Visible, room-temperature, surface-emitting laser using an epitaxial Fabry–Perot resonator with AlGaAs/AlAs quarter-wave high reflectors and AlGaAs/GaAs multiple quantum wells. *Applied Physics Letters* **50**, 1225 (1987).
15. KOYAMA, F., KINOSHITA, S. & IGA, K. Room-temperature continuous wave lasing characteristics of a GaAs vertical cavity surface-emitting laser. *Applied Physics Letters* **55**, 221 (1989).
16. IGA, K. Surface-emitting laser - Its birth and generation of new optoelectronics field. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **6**, 1201–1215 (2000).
17. KUSZELEWICZ, R., OUDAR, J. L., MICHEL, J. C. & AZOULAY, R. Monolithic GaAs/AlAs optical bistable étalons with improved switching characteristics. *Applied Physics Letters* **53**, 2138–2140 (1988).
18. SFEZ, B. G., OUDAR, J. L., MICHEL, J. C., KUSZELEWICZ, R. & AZOULAY, R. High contrast multiple quantum well optical bistable device with integrated Bragg reflectors. *Applied Physics Letters* **57**, 324–326 (1990).
19. RIVERA, T., LADAN, F. R., IZRAEL, A., AZOULAY, R., KUSZELEWICZ, R. & OUDAR, J. L. Reduced threshold all-optical bistability in etched quantum well microresonators. *Applied Physics Letters* **64**, 869–871 (1994).
20. SANCHEZ, S., MATOS, C. D. & PUGNET, M. Instantaneous optical modulation in bulk GaAs semiconductor microcavities. *Applied Physics Letters* **78**, 3779–3781 (2001).
21. SIMES, R. J., YAN, R. H., GEELS, R., COLDREN, L. A., ENGLISH, J. H. & GOSSARD, A. C. Fabry-Perot multiple-quantum well index modulator. *Applied Optics* **27**, 2103–2104 (1988).
22. CHEMLA, D., MILLER, D., SMITH, P., GOSSARD, A. & WIEGMANN, W. Room temperature excitonic nonlinear absorption and refraction in GaAs/AlGaAs multiple quantum well structures. *IEEE Journal of Quantum Electronics* **20**, 265–275 (1984).
23. GEHRSTZ, S., REINHART, F. K., GOURGON, C., HERRES, N., VONLANTHEN, A. & SIGG, H. The refractive index of  $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$  below the band gap : Accurate determination and empirical modeling. *Journal of Applied Physics* **87**, 7825 (2000).
24. CHEMLA, D. S. & MILLER, D. A. B. Room-temperature excitonic nonlinear-optical effects in semiconductor quantum-well structures. *Journal of the Optical Society of America B* **2**, 1155–1173 (1985).
25. VARSHNI, Y. Temperature dependence of the energy gap in semiconductors. *Physica* **34**, 149–154 (1967).
26. MILLER, D. A. B. Large room-temperature optical nonlinearity in GaAs/Ga $_{1-x}$ Al $_x$ As multiple quantum well structures. *Applied Physics Letters* **41**, 679 (1982).

27. RUDIN, S., REINECKE, T. L. & SEGALL, B. Temperature-dependent exciton linewidths in semiconductors. *Physical Review B* **42**, 11218 (1990).
28. ANDREANI, L. Radiative lifetime of free excitons in quantum wells. *Solid State Communications* **77**, 641–645 (1991).
29. MARTINEZ-PASTOR, J., VINATTIERI, A., CARRARESI, L., COLOCCI, M., ROUSSIGNOL, P. & WEIMANN, G. Temperature dependence of exciton lifetimes in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As single quantum wells. *Physical Review B* **47**, 10456 (1993).
30. GAMMON, D., RUDIN, S., REINECKE, T. L., KATZER, D. S. & KYONO, C. S. Phonon broadening of excitons in GaAs/Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>As quantum wells. *Physical Review B* **51**, 16785 (1995).
31. SCHMITT-RINK, S., CHEMLA, D. S. & MILLER, D. A. B. Theory of transient excitonic optical nonlinearities in semiconductor quantum-well structures. *Physical Review B* **32**, 6601 (1985).
32. BOYD, R. W. *Nonlinear optics* (Academic Press, 2008).
33. STURGE, M. D. Optical Absorption of Gallium Arsenide between 0.6 and 2.75 eV. *Physical Review* **127**, 768 (1962).
34. ABRAMS, R. L. & LIND, R. C. Degenerate four-wave mixing in absorbing media. *Optics Letters* **2**, 94–96 (1978).
35. BOYD, G. D. & KLEINMAN, D. A. Parametric Interaction of Focused Gaussian Light Beams. *Journal of Applied Physics* **39**, 3597–3639 (1968).
36. ANTOINE-VINCENT, N., NATALI, F., BYRNE, D., VASSON, A., DISSEIX, P., LEYMARIE, J., LEROUX, M., SEMOND, F. & MASSIES, J. Observation of Rabi splitting in a bulk GaN microcavity grown on silicon. *Physical Review B* **68**, 153313 (2003).



## Chapitre 5

# Interaction entre polaritons résolue en polarisation

Les microcavités de semiconducteurs sont un système modèle dans lequel peuvent être observés un grand éventail de phénomènes exotiques, comme l'oscillation paramétrique optique, fil conducteur de cette thèse, la condensation de polaritons [1], des vortex à l'intérieur de condensats [2] ou encore la superfluidité de polaritons [3]. Tous ces phénomènes font intervenir les interactions entre polaritons, qui ont l'importante propriété de dépendre du spin, ou de la polarisation, des particules en jeu. Ainsi, on distingue le potentiel d'interaction  $V_1$  entre polaritons de même polarisation circulaire (co-circulaires), et le potentiel  $V_2$  entre polaritons de polarisations circulaires opposées (anti-circulaires). Le comportement des phénomènes non-linéaires dépend de la valeur du rapport  $V_2/V_1$  [4], qui a longtemps été supposé constant dans l'interprétation des expériences en microcavité.

Ce chapitre s'inscrit dans la continuité du chapitre 4 où nous avons notamment observé l'oscillation paramétrique à basse température dans une microcavité couplée. Dans ce chapitre 5, nous utilisons la diffusion paramétrique comme moyen d'investigation des potentiels  $V_2$  et  $V_1$ . Nous analysons le comportement de la diffusion paramétrique dans une microcavité multiple, dans une configuration pompe-sonde dégénérée en énergie. Dans cette géométrie, l'échantillon est pompé en incidence normale et sondé à la même énergie sur une deuxième branche de polaritons, avec un angle non nul. Le complémentaire est observé à l'angle opposé, en accord de phase avec la sonde. Nous vérifierons d'abord que le processus est d'origine paramétrique en étudiant la dépendance de l'intensité du complémentaire, que l'on comparera aux résultats d'un modèle hamiltonien décrivant l'interaction paramétrique entre excitons. Puis nous étudierons le comportement du processus pompe-sonde en polarisation, comparé au modèle hamiltonien augmenté d'une description des deux canaux de polarisation décrits par  $V_1$  et  $V_2$ . Ceci nous permet de déduire la valeur relative de l'interaction d'échange  $V_2$  qui est responsable de l'inversion de la polarisation circulaire. Nous montrerons qu'elle dépend fortement du désaccord laser-exciton.

## 5.1 État de l'art

Dans les microcavités, on distingue le potentiel d'interaction  $V_1$  entre polaritons de même polarisation circulaire (co-circulaires), et le potentiel  $V_2$  entre polaritons de polarisations circulaires opposées (anti-circulaires). Ainsi, en incluant la dépendance en polarisation, représentée par le spin  $\sigma$ , le hamiltonien d'interaction total s'écrit comme une somme de deux termes (à partir de 1.58, dans une base de polaritons) [4] :

$$H_{int} = \sum_{k,k',q,\sigma=\pm} \left( V_1(q)(p_{k,\sigma}^\dagger p_{k',\sigma}^\dagger p_{k+q,\sigma} p_{k-q,\sigma} + h.c.) + V_2(q)(p_{k,\sigma}^\dagger p_{k',-\sigma}^\dagger p_{k+q,\sigma} p_{k-q,-\sigma} + h.c.) \right) \quad (5.1)$$

Quand SAVVIDIS *et al.* [5] ont observé pour la première fois l'amplification paramétrique dans une microcavité simple, celle-ci est apparue avec des faisceaux co-circulaires, tandis qu'aucun gain n'était visible pour des polarisations anti-circulaires, ce qui laisse penser que le potentiel  $V_2$  est soit nul, soit nettement plus petit que  $V_1$ . Des études ultérieures ont confirmé cette observation [6, 7].

Plusieurs études expérimentales ont été menées pour évaluer la valeur relative du potentiel d'échange  $V_2$ . RENUCCI *et al.* [8] concluent à la faible valeur relative de  $V_2$  en observant l'évolution temporelle des populations de polaritons, résolue en spin. Ils extraient de leurs mesures l'estimation  $\frac{V_2}{V_1} \approx -0.08$  à désaccord cavité-exciton nul, notant donc en particulier que  $V_1$  et  $V_2$  sont de signes opposés [9]. KASPRZAK *et al.* [10] étudient le degré de polarisation de la luminescence d'une microcavité, jusque dans le régime de condensation, et évaluent la somme  $V_1 + V_2$ , sans toutefois pouvoir évaluer les deux termes indépendamment. VÖRÖS *et al.* [11] présentent une méthode pour évaluer les potentiels d'interaction basée sur la mesure du *blueshift* et de l'élargissement des raies polaritoniques dans une microcavité conçue autour de deux puits couplés sous champ électrique. Longtemps, le rapport  $V_2/V_1$  a été supposé constant dans l'interprétation des expériences en microcavité.

Pendant ce temps, diverses approches théoriques ont également visé à évaluer  $V_2$ . En 1972, BOBRY SHEVA *et al.* [12] calculaient déjà l'interaction entre excitons de Wannier dans un cristal en tenant compte du spin. Plus récemment, CIUTI *et al.* [13] ont présenté un modèle pour la diffusion élastique exciton-exciton, en tenant aussi compte du degré de liberté de spin. COMBESCOT *et al.* [14] étudient les conséquences des interactions de spin sur les excitons "noirs" et la condensation de polaritons. SCHUMACHER *et al.* [15], WOUTERS [16], GLAZOV *et al.* [17] analysent le mécanisme d'interaction à l'aide de matrices de diffusion exciton-exciton dont les éléments correspondent aux états de polarisations possibles, en particulier l'élément correspondant à la diffusion anti-circulaire.

Enfin, le travail le plus récent sur ce sujet a été réalisé par VLADIMIROVA *et al.* [18], qui ont étudié expérimentalement la transmission non-linéaire résolue en polarisation d'une microcavité, ce qui a permis d'évaluer  $V_2/V_1$ . Ils ont obtenu qu'il existe une variation de ce rapport en fonction du désaccord et ont comparé ces résultats avec un modèle théorique des différents mécanismes d'interactions entre polaritons.

L'approche que nous présentons dans ce chapitre 5 fournit une méthode mesure directe, précise et pratique de  $V_2/V_1$  à partir de la diffusion paramétrique dans une microcavité couplée. Nous l'utilisons pour mesurer  $V_2/V_1$  sur une large gamme de

désaccords inexplorés, fournissant ainsi une référence pour prédire et interpréter les phénomènes dépendant de la polarisation dans les microcavités [4].

## 5.2 Échantillon

L'échantillon qui a été utilisé pour cette étude en polarisation a été conçu sur la base de trois cavités (figure 5.1) : deux des cavités fournissent les modes nécessaires au processus paramétrique dégénéré, et la troisième cavité sert de cavité d'ajustement, comme nous l'expliquons ci-dessous. Les trois cavités sont obtenues à partir de quatre miroirs de Bragg, qui sont composés respectivement de 13, 13, 13 et 25 paires de  $\text{Al}_{0,05}\text{Ga}_{0,95}\text{As}$  et  $\text{AlAs}$ , de sorte que les modes photoniques sont de grande finesse (d'après les simulations préalables à la fabrication,  $F \sim 3000$  pour la cavité sans puits quantique). Pour être étudiée en réflexion, nous avons conçu la structure assymétrique, avec un miroir arrière épais.

Les deux cavités externes contiennent chacune trois puits quantiques d' $\text{In}_{0,07}\text{Ga}_{0,93}\text{As}$ . Les états  $1s$  des excitons correspondants se trouvent à 1.4754 eV. La cavité centrale est vide. Sa résonance est placée à une énergie largement au-dessus des deux autres cavités, et surtout largement au-dessus de l'exciton. Cette cavité sert donc de miroir à réflectivité ajustable, ce qui permet de faire varier le couplage optique entre les deux cavités externes. On la désignera comme la "cavité d'ajustement".

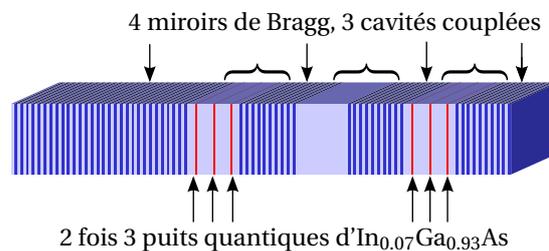


FIGURE 5.1 – Structure de la microcavité triple utilisée pour l'étude en polarisation.

Ainsi, la structure est composée de trois modes optiques et deux modes excitoniques (un pour chaque cavité externe), ce qui donne cinq branches de polaritons. La figure 5.2 montre une dispersion typique obtenue par photoluminescence en excitation non résonante, où quatre branches de polaritons sont visibles (deux branches basses et deux branches hautes, moins visibles). Cette dispersion a été obtenue dans le cas où les deux cavités extérieures et les excitons sont dégénérés. La cinquième branche de polariton est essentiellement composée du mode de la "cavité d'ajustement", et se situe donc à une énergie plus élevée. Les quatre modes de polaritons visibles sont des états mixtes excitons-photons délocalisés sur toute la structure, pour lesquels le champ est plus intense dans les deux cavités externes. Le dédoublement de Rabi, qui décrit le couplage entre les excitons et des photons, et qui correspond à la distance entre les deux polaritons inférieurs et les deux polaritons supérieurs, est de 6 meV. Les deux cavités extérieures dégénérées donnent des modes délocalisés qui sont séparés par 1 meV, ce qui correspond à la distance entre les deux premières branches de polaritons sur la figure 5.2.

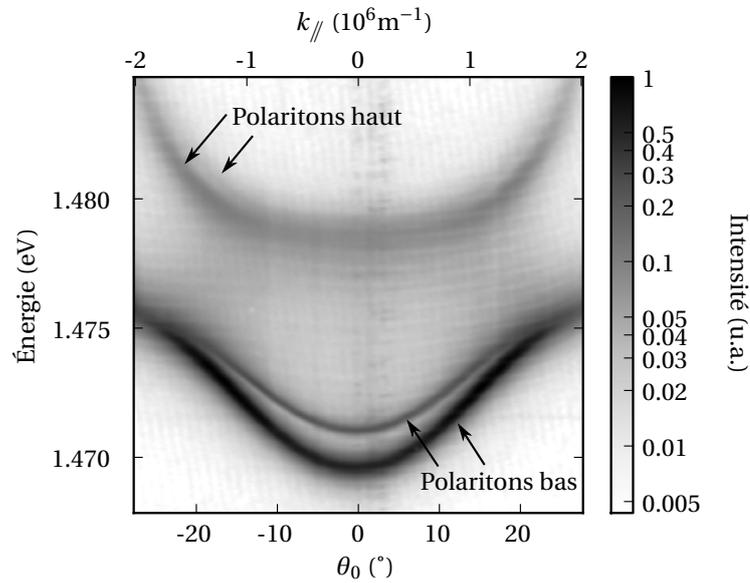


FIGURE 5.2 – Dispersion des modes de polaritons obtenues par la mesure de photoluminescence en excitation non résonante.

### 5.3 Diffusion paramétrique en excitation résonante

On excite l'échantillon dans une configuration pompe-sonde comme illustré sur la figure 5.3. Le montage est commun avec les autres expériences et détaillé dans le chapitre 2. Sur l'échantillon, le spot de pompe a un diamètre de  $50 \mu\text{m}$  environ, et le spot de sonde est légèrement plus petit.

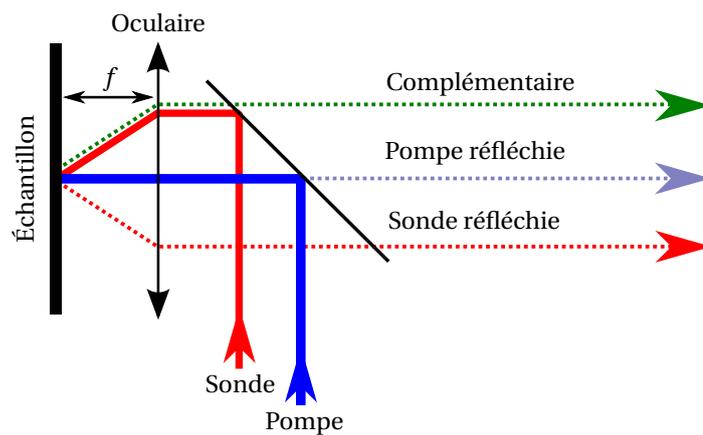


FIGURE 5.3 – Schéma de principe du montage d'excitation pompe-sonde en réflexion.

La pompe et la sonde sont dégénérées en énergie. Tandis que la pompe excite la deuxième branche basse de polaritons en incidence normale, la sonde excite la première branche basse de polaritons avec un angle non-nul, comme l'illustre la figure 5.4. Quand les conditions requises sont remplies, notamment quand la pompe et la sonde sont suffisamment proches de l'énergie de l'exciton, un faisceau supplémentaire est observé. Il a la même énergie que la pompe et la sonde, et son vecteur d'onde est le symétrique de celui de la sonde, par rapport au vecteur d'onde de la pompe. On identifie ce faisceau au *complémentaire* produit par la diffusion paramétrique des polaritons de pompe, stimulée par la présence des polaritons de sonde. La figure 5.5 reproduit une image typique obtenue dans le plan de Fourier, qui illustre la conservation du vecteur d'onde : le complémentaire (en bas à gauche de la figure) est le symétrique de la sonde (en haut à droite) par rapport à la pompe (au centre).

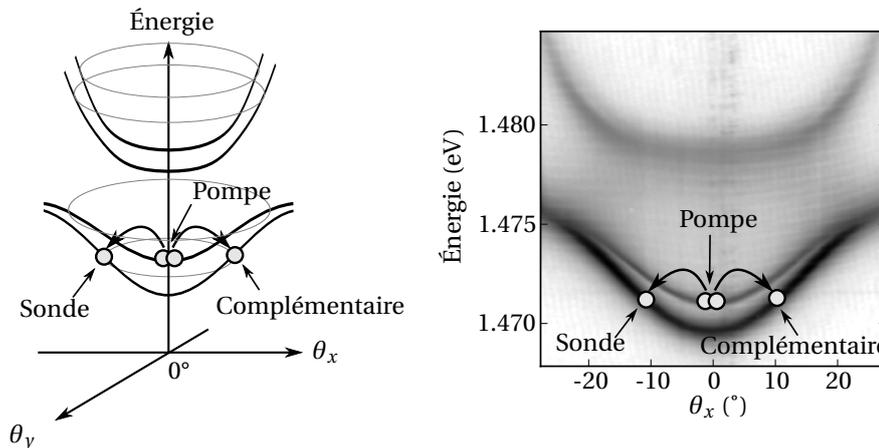


FIGURE 5.4 – Dispersion de l'excitation pompe-sonde. Le schéma de gauche illustre la symétrie de révolution de la dispersion. Ainsi la sonde et le complémentaire sont situés sur un anneau d'égale énergie.

### 5.3.1 Conservation du vecteur d'onde

La conservation du vecteur d'onde impose que le complémentaire soit toujours le symétrique de la sonde dans le plan de Fourier, par rapport à la pompe. C'est ce qu'on vérifie en déplaçant la sonde sur l'anneau Rayleigh, comme l'illustre la figure 5.6. On peut aussi changer légèrement l'angle de la pompe au voisinage de l'incidence normale, sans trop s'écarter pour que la pompe et le complémentaire restent dans les modes de la structure. On observe alors également que le complémentaire suit les déplacements de la pompe en restant le symétrique de la sonde.

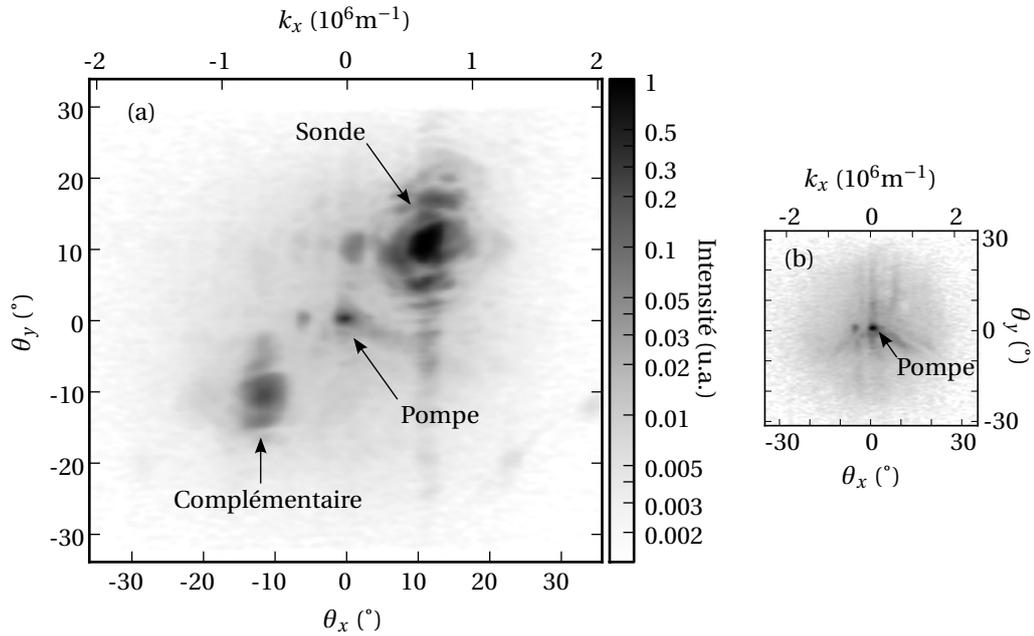


FIGURE 5.5 – (a) Image du processus pompe-sonde dans le plan de Fourier. La pompe et la sonde sont de polarisations opposées. Le complémentaire est polarisé comme la sonde, et un polariseur bloque la pompe, dont il ne reste que très peu d'intensité sur cette image. (b) Pour référence, image du plan de Fourier quand seul le faisceau de pompe excite la structure.

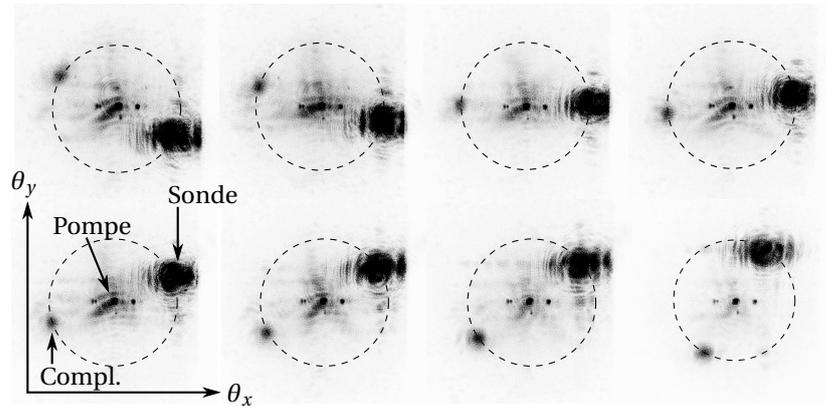


FIGURE 5.6 – Images du processus pompe-sonde dans le plan de Fourier, dans des conditions similaires à la figure 5.5, mais en déplaçant la sonde sur l'anneau Rayleigh. Le complémentaire “suit” la position de la sonde.

## 5.4 Modèle hamiltonien

Nous comparerons les mesures expérimentales avec un modèle<sup>1</sup> construit à partir du hamiltonien 1.58 présenté au chapitre 1, auquel on a rajouté la dépendance en polarisation du potentiel d'interaction. On utilise donc le hamiltonien  $H = H_0 + H_{int}$ , où  $H_{int}$  décrit l'interaction entre excitons :

$$H_0 = \sum_{\sigma=\pm} \hbar\omega \left( p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma} + p_{s\sigma}^\dagger p_{s\sigma} + p_{c\sigma}^\dagger p_{c\sigma} \right) \quad (5.2)$$

$$\begin{aligned} H_{int} = \sum_{\sigma=\pm} \left( & V_1(q=0) p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma} p_{p\sigma} \right. \\ & + V_2(q=0) p_{p\sigma}^\dagger p_{p-\sigma}^\dagger p_{p\sigma} p_{p-\sigma} \\ & + V_1(q=\kappa) (p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma}^\dagger p_{s\sigma} p_{c\sigma} + h.c.) \\ & \left. + V_2(q=\kappa) (p_{p\sigma}^\dagger p_{p-\sigma}^\dagger p_{s\sigma} p_{c-\sigma} + h.c.) \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

$p_{p/s/c,\sigma}$  sont respectivement les opérateurs annihilation pour la pompe, la sonde, et le complémentaire, avec la polarisation circulaire  $\sigma = \pm$ . Dans notre configuration dégénérée en énergie,  $\hbar\omega = \hbar\omega_p = \hbar\omega_s = \hbar\omega_c$  est l'énergie d'un polariton pour tous les modes.

$V_1$  et  $V_2$  sont respectivement les potentiels d'interaction pour les canaux de diffusion des polarisations co-circulaires et anti-circulaires. Les deux premiers termes dans  $H_{int}$  correspondent à l'effet Kerr ou *blueshift* causé par l'interaction des polaritons de pompe entre eux, que nous présentés dans la partie 1.1.4 du chapitre 1. Les deux derniers termes décrivent la diffusion paramétrique de deux polaritons de pompe en un polariton sonde et un polariton complémentaire, respectivement en conservant ou en inversant la polarisation circulaire.  $\kappa$  correspond à l'écart entre les vecteurs d'onde de la pompe et de la sonde.  $H_{int}$  ne contient que les quatre canaux d'interaction qui sont prépondérants dans notre configuration. Nous avons négligé les termes d'effet Kerr croisé (du type  $p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma}^\dagger p_{s\sigma} p_{s\sigma}$  et  $p_{p\sigma}^\dagger p_{p\sigma}^\dagger p_{c\sigma} p_{c\sigma}$ ) ainsi que tous les autres termes faisant intervenir la sonde et le complémentaire à des ordres supérieurs.

Cet hamiltonien donne un ensemble d'équations différentielles couplées pour les champs de polaritons stationnaires. Ces équations se résument au système linéaire  $M \cdot v = S$  pour le vecteur  $v$ , complexe et dépendant du temps, défini par  $v = (p_{s+}, p_{c+}^*, p_{s-}, p_{c-}^*)$ , et où  $M$  est :

$$M = \begin{pmatrix} \Omega & V_1(p_{p+})^2 & 0 & V_2 p_{p+} p_{p-} \\ V_1(p_{p+}^*)^2 & \Omega^* & V_2 p_{p+}^* p_{p-}^* & 0 \\ 0 & V_2 p_{p+} p_{p-} & \Omega & V_1(p_{p-})^2 \\ V_2 p_{p+}^* p_{p-}^* & 0 & V_1(p_{p-}^*)^2 & \Omega^* \end{pmatrix} \quad (5.4)$$

Dans  $M$ , on a utilisé  $\Omega = (\omega_0 + \delta\omega_0 - \omega) - i\gamma$ , où  $\omega_0$  est la pulsation des modes sonde et complémentaire,  $\delta\omega_0$  prend en compte les éventuels blueshifts de la résonance et  $\omega_0$  est la pulsation du laser. Ainsi  $(\omega_0 + \delta\omega_0 - \omega)$  correspond au désaccord entre le laser et les modes polaritoniques. Enfin  $\gamma$  est le taux de relaxation des polaritons de la sonde et du complémentaire.

On étudie le comportement de l'intensité du complémentaire  $I_c = |p_{i+}|^2 + |p_{i-}|^2$  en inversant  $M$ , en utilisant un vecteur source  $S$  qui décrit une sonde polarisée ver-

1. Ce modèle a été écrit principalement par David Taj, post-doc au LPA au moment de cette thèse.

ticalement, comme dans l'expérience :  $S = (1, 0, 1, 0)$  et enfin une pompe polarisée linéairement avec un angle  $\theta_p$  :  $p_{p+} = e^{i\theta_p}$ ,  $p_{p-} = e^{-i\theta_p}$ .

Supposons enfin qu'on excite précisément à la résonance :  $\Omega = -i\gamma$ . En cherchant les solutions du système pour des intensités de pompe loin sous le seuil d'oscillation, c'est-à-dire pour  $I_p$  petit, on trouve :

$$I_c \propto I_s I_p^2 V_1^2 \left( 1 + \left( \frac{V_2}{V_1} \right)^2 + 2 \frac{V_2}{V_1} \cos(2\theta_p) \right) \quad (5.5)$$

Ainsi nous obtenons la dépendance de l'intensité du complémentaire avec la puissance de pompe et de sonde, ainsi que la dépendance avec  $\theta_p$  qui peut nous servir, comme nous le verrons plus loin, à extraire  $\frac{V_2}{V_1}$ .

## 5.5 Étude de l'intensité du complémentaire

Examinons expérimentalement la dépendance de l'intensité du complémentaire avec les paramètres d'excitation.

### 5.5.1 Intensité du complémentaire en fonction de la puissance de sonde

Tout d'abord, l'intensité du complémentaire en fonction de la puissance de sonde est représentée sur la figure 5.7. Les autres paramètres de l'excitation sont fixés : le désaccord laser-exciton est choisi à -2.5 meV, la puissance de pompe est de 50 mW et la pompe et la sonde sont en polarisations croisées. Le modèle ci-dessus (5.5) prévoit une dépendance linéaire pour cette mesure :

$$I_c \propto I_s \quad (5.6)$$

C'est effectivement ce que l'on observe dans l'expérience, jusqu'à une puissance de sonde de 2 mW. Aux puissances de sonde plus grandes, l'intensité du complémentaire sature. Ceci indique que l'efficacité de la diffusion paramétrique est limitée, ce qui peut être justifié par la compétition avec d'autres processus, comme le décalage des modes, la déplétion de la pompe (que nous avons pris en compte au chapitre 3 par l'équation 3.21c), ou encore l'absorption croisée à 2 photons (un photon de la sonde et un photon de la pompe absorbé simultanément) [19].

### 5.5.2 Intensité du complémentaire en fonction de la puissance de pompe

L'intensité du complémentaire en fonction de la puissance de pompe est représentée sur la figure 5.8. Dans cette mesure, la puissance de sonde est fixée à 2 mW, le désaccord laser-exciton est de -2.8 meV et la pompe et la sonde sont en polarisations croisées. Le modèle (5.5) prévoit une dépendance quadratique pour cette mesure :

$$I_c \propto I_p^2 \quad (5.7)$$

L'expérience donne effectivement une dépendance avec le carré de la puissance de pompe jusqu'à 80 mW. Au delà de 80 mW, l'intensité du complémentaire décroît

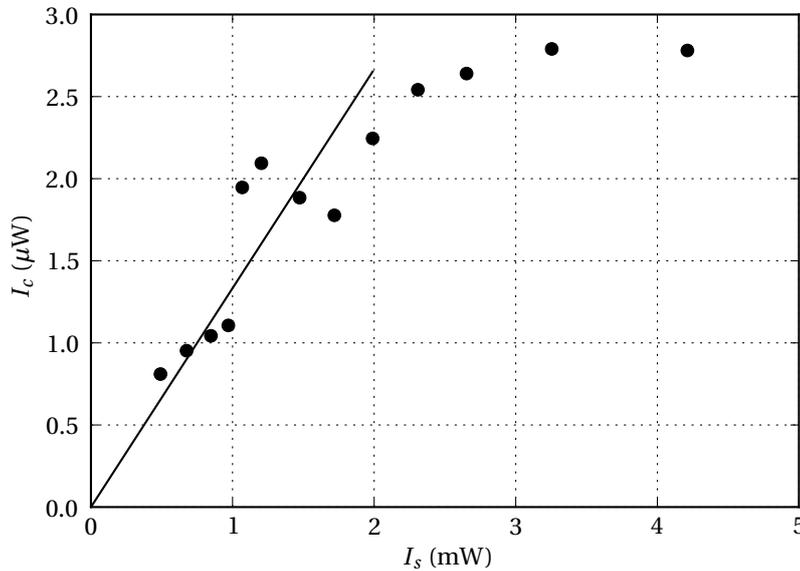


FIGURE 5.7 – Intensité du complémentaire en fonction de l'intensité de la sonde. Les points sont les données expérimentales, la ligne continue est un fit linéaire aux basses puissances correspondant au modèle hamiltonien.

dramatiquement, indiquant que la diffusion paramétrique s'arrête complètement. Ceci peut être interprété par d'autres effets non-linéaires qui affectent la structure, par exemple selon le scénario suivant : quand la puissance augmente, les branches de polaritons s'élargissent et se décalent en énergie, le système se rapproche du régime de couplage faible, et ainsi le faisceau sonde sort de la résonance et ne peut plus se coupler avec les modes de la structure.

### 5.5.3 Intensité du complémentaire en fonction du désaccord laser-exciton

Terminons l'étude en puissance en examinant l'intensité du complémentaire en fonction du désaccord  $\delta = E_{laser} - E_{exciton}$ . La mesure est représentée sur la figure 5.9. Ici la puissance de pompe est fixée à 60 mW, la puissance de sonde à 2 mW, et la pompe et la sonde sont toujours en polarisations croisées. L'enveloppe des données expérimentales prend la forme d'une courbe en cloche atteignant son maximum autour du désaccord nul. Pour des désaccords plus petits que -4 meV, le complémentaire n'est plus visible. Les variations sous l'enveloppe de la figure 5.9 sont interprétées comme des situations où l'excitation n'était pas optimale, notamment dans la qualité de superposition des spots pompe et sonde, et du réglage précis de leurs angles d'incidence.

Nous avons constaté que le processus a lieu pour les désaccords proches de zéro dans le régime de couplage faible, où les faisceaux de pompe et de sonde excitent la structure par les modes de cavités seulement faiblement couplés aux excitons. Malgré tout, les excitons permettent toujours au processus non-linéaire d'avoir lieu.

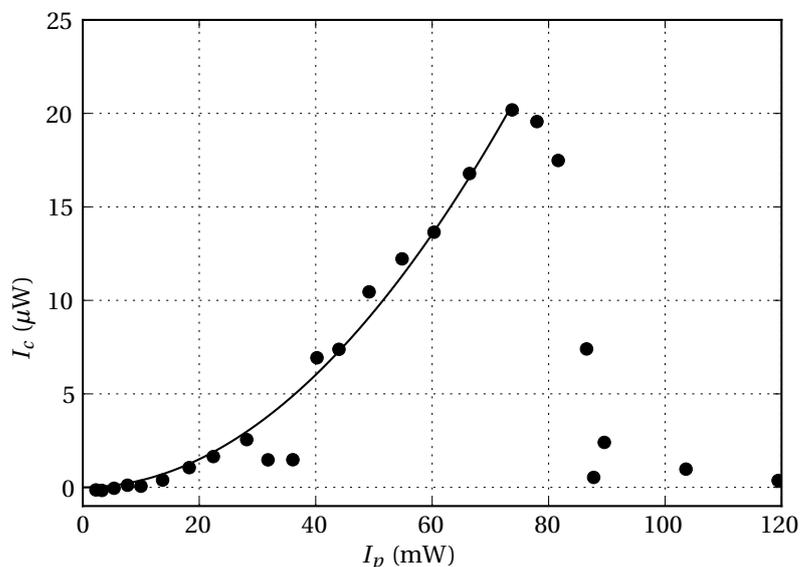


FIGURE 5.8 – Intensité du complémentaire en fonction de l’intensité de la pompe. Les points sont les données expérimentales, la courbe continue est un fit quadratique aux basses puissances correspondante au modèle hamiltonien.

Dans l’équation 5.5, les termes<sup>2</sup> dépendant directement du désaccord sont  $V_1$  et  $V_2$ . Notre situation expérimentale correspond à  $\theta_p = \frac{\pi}{2}$ , ce qui donne  $I_c \propto (V_1 - V_2)^2$ . Or, chacun de ces potentiels dépend du désaccord au travers du coefficient de Hopfield excitonique des polaritons :  $V_i \propto X(\delta)^4$ , d’où on conclut finalement :

$$I_c \propto X(\delta)^8 \quad (5.8)$$

Sur la figure 5.9, on a reproduit un fit avec  $X(\delta)^8$ , qui est maximal au niveau de l’exciton, et reproduit fidèlement la forme en cloche de l’enveloppe.

## 5.6 Étude en fonction de la polarisation pompe-sonde

Après avoir vérifié que le processus est bien d’origine paramétrique et que le comportement en puissance du complémentaire peut être modélisé de manière satisfaisante par le hamiltonien 5.2, poursuivons en étudiant son comportement en polarisation. Cela nous amènera finalement à mesurer le rapport  $\frac{V_2}{V_1}$ .

2. On pourrait ajouter que l’expérience est réalisée pour des intensités incidentes constantes, mais pas pour des populations constantes. Or le modèle prévoit l’évolution des populations seulement, et la relation entre les populations intracavité et les intensités incidentes dépend aussi du désaccord. Malgré tout, comme le montre la suite, prendre seulement en compte la variation de  $V_1$  et  $V_2$  avec le désaccord suffit à reproduire l’enveloppe des données expérimentales avec une précision satisfaisante.

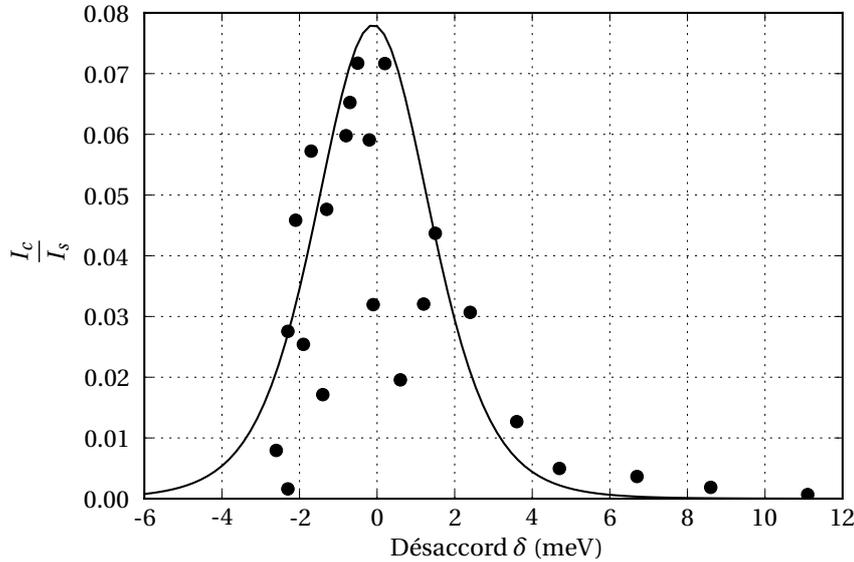


FIGURE 5.9 – Intensité du complémentaire en fonction du désaccord  $\delta$  entre le laser et l'exciton. Les points sont les données expérimentales, la courbe continue est un fit avec  $aX(\delta)^8$  où  $a$  est une constante.

### 5.6.1 Polarisation du complémentaire

La présence des deux canaux de polarisation, direct ( $V_1$ ) et croisé ( $V_2$ ), entraîne un effet de rotation sur la polarisation du complémentaire. Au moins au plus bas ordre en  $I_p$ , le modèle prévoit que le complémentaire soit le symétrique de la sonde par rapport à la pompe, ce qui se traduit sur les angles de polarisation linéaire par :

$$\theta_c - \theta_p = \theta_p - \theta_s \quad (5.9)$$

$$\Leftrightarrow \theta_c = 2\theta_p - \theta_s \quad (5.10)$$

La figure 5.10 reproduit une série de mesures de l'angle du complémentaire alors qu'on fait tourner l'angle de la pompe. Chaque point de cette figure est obtenu par la méthode du polariseur tournant (voir annexe B). La puissance de pompe est fixée à 60 mW, la puissance de sonde est fixée à 4 mW, et le désaccord laser-exciton est de -2.6 meV. Ainsi, on trouve bien que l'angle du complémentaire varie comme  $\theta_c = 2\theta_p - \theta_s$ .

### 5.6.2 Intensité du complémentaire

Enfin, la variation de l'intensité du complémentaire quand la polarisation de la pompe tourne nous permet d'évaluer le rapport  $V_2/V_1$ . La figure 5.11 reproduit un résultat de mesure avec notre montage. Les données d'intensité présentent deux maxima de valeurs différentes pour les polarisations parallèles ( $0^\circ$ ) et orthogonales ( $90^\circ$ ), ainsi qu'un minimum autour de  $40^\circ$ .

Le minimum très marqué à  $40^\circ$  correspond à la réponse en polarisation du montage de visualisation, comprenant notamment le réseau du spectromètre derrière

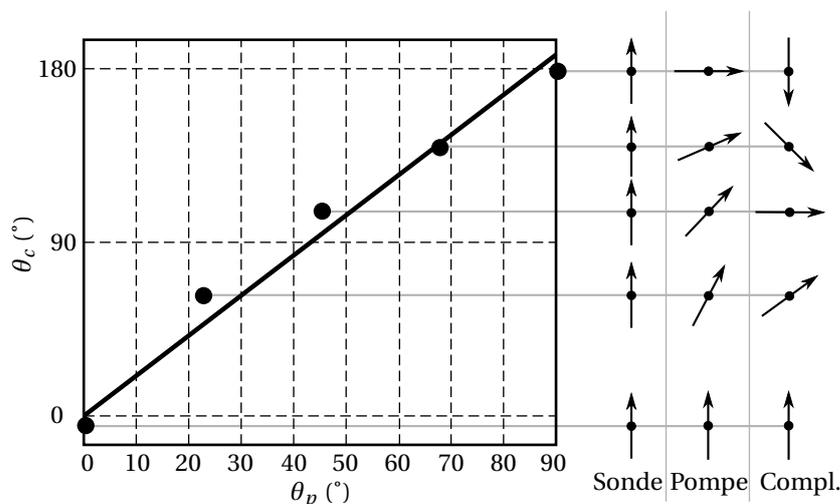


FIGURE 5.10 – Angle  $\theta_c$  de polarisation linéaire du complémentaire en fonction de la polarisation de la pompe. La polarisation de la sonde est maintenue verticale pendant que la polarisation de la pompe est tournée entre  $0^\circ$  (parallèle à la sonde) et  $90^\circ$  (perpendiculaire). Les points sont les données expérimentales, la droite continue est un fit pour  $\theta_c = 2\theta_p - \theta_s$ .

lequel est placée la caméra CCD servant aux mesures d'intensités. Ce réseau, ainsi que les lames séparatrices traversées par les faisceaux, sont sensibles à la direction de polarisation linéaire du complémentaire, ainsi qu'à son léger caractère elliptique, dû également aux lames séparatrices. On calibre séparément cette réponse en polarisation  $f(\theta_c)$  en fonction de trois paramètres expérimentaux :

- le rapport de la réponse du montage de visualisation en polarisation horizontale sur la réponse en polarisation verticale :  $\rho = \frac{\text{horizontal}}{\text{vertical}} = 0.068$  (voir figure 2.9),
- un décalage constant des angles  $\theta_0 = -3.2^\circ$ , qui correspond à un décalage entre la verticale telle qu'indiquée par le polariseur de référence, gradué, et la verticale définie par la fente et le réseau du spectromètre,
- et enfin une composante elliptique représentée par un angle  $\psi = 15^\circ$  (voir partie 2.3.2 et annexe B).

On obtient la fonction d'appareil  $f(\theta_c)$  suivante, décrivant la réponse en polarisation :

$$\begin{aligned}
 f(\theta_c) \propto & \cos^2(\psi \sin(2(\theta_c - \theta_0))) \cos^2(2(\theta_c - \theta_0)) \\
 & + \sin^2(\psi \sin(2(\theta_c - \theta_0))) \sin^2(2(\theta_c - \theta_0)) \\
 & + \rho \cos^2(\psi \sin(2(\theta_c - \theta_0))) \cos^2\left(2(\theta_c - \theta_0) - \frac{\pi}{2}\right) \\
 & + \rho \sin^2(\psi \sin(2(\theta_c - \theta_0))) \sin^2\left(2(\theta_c - \theta_0) - \frac{\pi}{2}\right)
 \end{aligned} \tag{5.11}$$

La forme de  $f(\theta_c)$  (en pointillés sur la figure 5.11) décrit donc la présence du

minimum à  $40^\circ$ , mais reste à expliquer l'assymétrie entre 0 et  $90^\circ$ . Le modèle hamiltonien 5.5 décrit précisément une telle assymétrie dès que l'on choisit  $V_2$  non nul. On fait donc finalement un fit avec :

$$f(\theta_c) \left( 1 + \left( \frac{V_2}{V_1} \right)^2 + 2 \frac{V_2}{V_1} \cos(2\theta_p) \right) \quad (5.12)$$

L'ajustement des paramètres nous donne finalement la valeur relative de  $V_2$  (variable pour ce désaccord) :

$$V_2 \approx -0.19V_1 \quad (5.13)$$

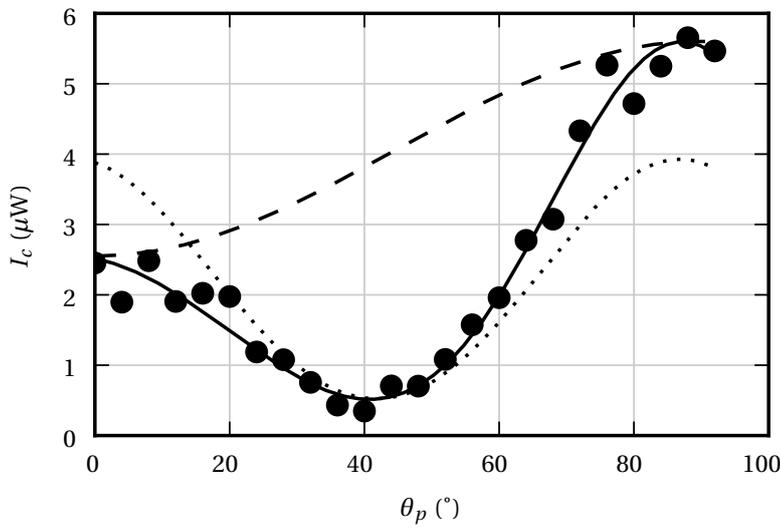


FIGURE 5.11 – Intensité  $I_c$  du complémentaire en fonction de la polarisation de la pompe, pour  $\delta = -1.2$  meV. La courbe continue est un fit tenant compte à la fois des deux canaux de diffusion paramétrique et de la réponse du montage de visualisation, selon l'équation 5.12, avec notamment  $V_2/V_1 = -0.19$ . La courbe en pointillés donne uniquement la variation due au montage de visualisation, en prenant  $V_2/V_1 = 0$ . Enfin, la courbe en tirets donne uniquement la variation due aux deux canaux de diffusion paramétrique, en prenant  $\rho = 0, \psi = 0$ .

Une autre façon de procéder est de normaliser les données par la fonction d'appareil. La figure 5.12 reproduit les données expérimentales de l'intensité du complémentaire normalisées par  $f(\theta_c)$  qui, d'après notre modèle, sont à ajuster avec l'équation  $1 + (V_2/V_1)^2 + 2V_2/V_1 \cos(2\theta_p)$ . Cette équation ne contient plus qu'un seul paramètre,  $V_2/V_1$ .

### 5.6.3 Étude de $V_2/V_1$ en fonction du désaccord

Alors que le rapport  $V_2/V_1$  est souvent considéré indépendant du désaccord dans l'interprétation des expériences en microcavités. Pourtant la valeur précise de ce rapport influe sur les phénomènes non-linéaires observables [4]. Nous avons donc réalisé un ensemble de mesures en faisant varier le désaccord laser-exciton entre -2 meV et +5 meV. La figure 5.13 reproduit les résultats expérimentaux obtenus. Nous

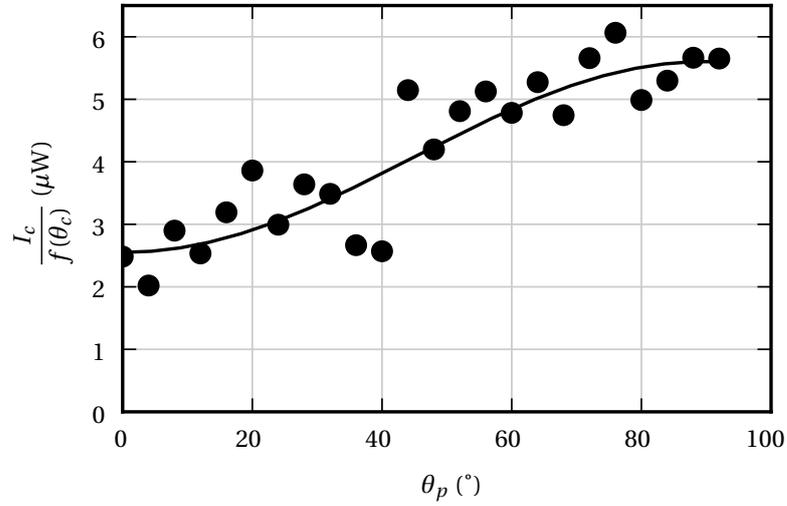


FIGURE 5.12 – Intensité  $I_c$  du complémentaire normalisée à la réponse du montage de visualisation  $f(\theta_c)$ , en fonction de la polarisation de la pompe, pour  $\delta = -1.2$  meV. La courbe continue est un fit tenant compte des deux canaux de diffusion paramétrique selon l'équation  $1 + \left(\frac{V_2}{V_1}\right)^2 + 2\frac{V_2}{V_1} \cos(2\theta_p)$ , avec  $V_2/V_1 = -0.19$ .

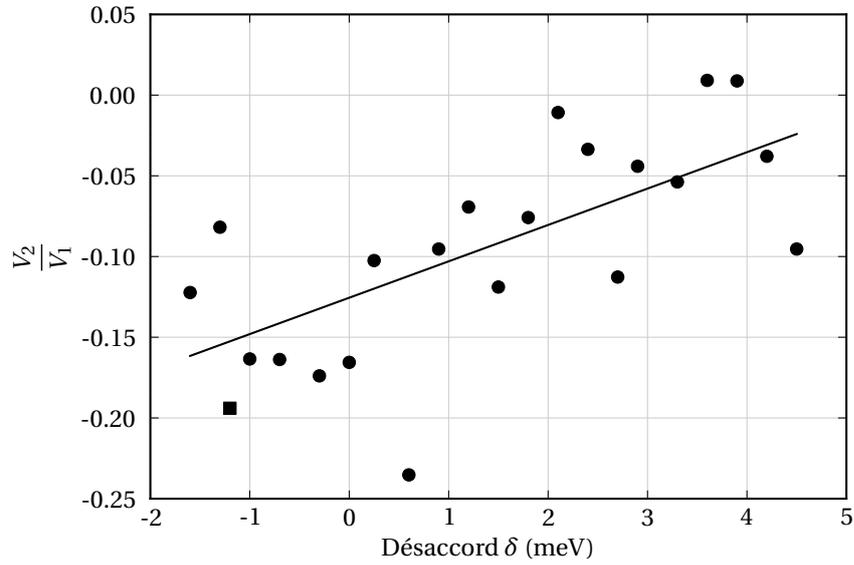


FIGURE 5.13 – Rapport  $V_2/V_1$  mesuré sur une gamme de désaccord laser-exciton. Le carré (■) correspond à la série de mesure représentée sur les figures 5.11 et 5.12. La ligne continue est un guide visuel illustrant la variation globale de ce rapport.

trouvons que le rapport  $V_2/V_1$  augmente progressivement de -0.2 à 0 environ sur cette gamme de désaccords.

Cet intervalle de valeurs est en bon accord avec l'estimation réalisée par KAVOKIN *et al.* [20], qui ont obtenu  $V_2 \approx -0.04V_1$  à un désaccord cavité-exciton de 0 meV dans un échantillon de microcavité simple contenant un unique puits (à peu près équivalent à un désaccord laser-exciton  $\delta$  de -2 meV dans notre échantillon). La référence [9] indique un rapport  $V_2 \approx -0.08V_1$  à un désaccord cavité-exciton nul, avec un accord encore meilleur avec nos mesures.

Les données que nous avons présentées sont complémentaires de celles obtenues dans le travail concomitant de VLADIMIROVA *et al.* [18], dont on reproduit le résultat sur la référence 5.14. Ce travail indique que  $V_2/V_1$  diminue progressivement de 0 jusqu'à -1 pour des désaccords cavité-exciton allant de -3 à 0 meV, c'est-à-dire (étant donné le splitting de Rabi) pour des désaccords laser-exciton  $\delta$  allant environ de -4 à -1.2 meV. Pour les désaccords supérieurs,  $V_2/V_1$  remonte vers 0, mais les mesures sont très dispersées. C'est dans cette gamme de désaccords et au-delà que la méthode présentée dans ce chapitre 5 nous renseigne, en indiquant que  $V_2/V_1$  augmente progressivement de -0.2 à 0.0. La méthode que nous utilisons est, selon nous, une méthode expérimentalement simple, pratique, et précise d'évaluer le rapport  $V_2/V_1$  sur une large gamme de paramètres.

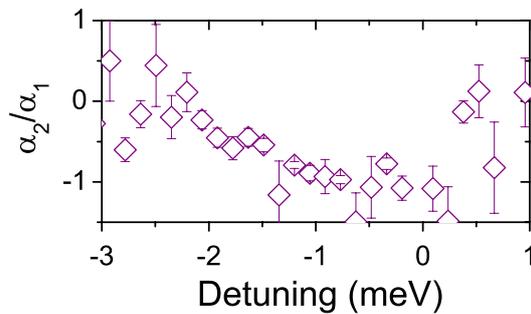
VLADIMIROVA *et al.*PHYSICAL REVIEW B **82**, 075301 (2010)

FIGURE 5.14 – Figure extraite de la référence [18]. La légende dans l'article est celle-ci : "FIG. 4. (b) Ratio between polariton interaction constants averaged over three different powers". Le désaccord en abscisse correspond à l'écart cavité-exciton, ce qui correspond approximativement à des désaccords laser-exciton  $\delta$  allant environ de -4 à -1.2 meV dans nos expériences. Les données présentées dans la figure 5.13 sont complémentaires de celles de la présente figure, pour les désaccords plus grands.

#### 5.6.4 Conséquences des valeurs de $V_2/V_1$ obtenues

Dans le processus de diffusion paramétrique, qui conduit à l'oscillation paramétrique, le terme de gain est proportionnel à  $V_1 + V_2$  dans le cas où la polarisation linéaire est conservée, et à  $V_1 - V_2$  dans le cas où la polarisation linéaire est inversée. Ainsi, puisque nous avons trouvé que  $V_2$  est négatif et plus petit que  $V_1$  sur la gamme de désaccords étudiée, c'est donc dans la configuration où la polarisation linéaire est inversée que l'oscillation paramétrique aura lieu. Ceci correspond aux observations expérimentales [21–23]. Vue l'évolution de  $V_2$ , cette sélectivité en polarisation sera d'autant plus marquée que l'énergie d'excitation est très inférieure à

celle de l'exciton.

## Conclusion

Dans ce chapitre 5, nous avons donc étudié le processus de diffusion paramétrique dégénéré en énergie dans une microcavité triple. Un faisceau de pompe est diffusé par une sonde vers un faisceau complémentaire de même énergie et respectant la conservation du vecteur d'onde. Le comportement de ce complémentaire, autant en puissance qu'en polarisation, correspond à un modèle simple d'interaction entre polaritons. Ceci nous permet de mesurer la valeur relative des potentiels d'interaction  $V_1$  et  $V_2$  qui conservent ou inversent la polarisation circulaire. La méthode présentée est précise et pratique. Nous avons étudié le rapport  $V_2/V_1$  sur un large gamme de désaccords, complétant ainsi d'autres mesures très récentes et les étendant sur des gammes de désaccord inexplorées. Ces informations sont précieuses pour l'étude des phénomènes non-linéaires dans les microcavités.

## Références

1. KASPRZAK, J., RICHARD, M., KUNDERMANN, S., BAAS, A., JEAMBRUN, P., KEELING, J. M. J., MARCHETTI, F. M., SZYMANSKA, M. H., ANDRE, R., STAEHLI, J. L., SAVONA, V., LITTLEWOOD, P. B., DEVEAUD, B. & DANG, L. S. Bose-Einstein condensation of exciton polaritons. *Nature* **443**, 409–414 (2006).
2. LAGOUDAKIS, K. G., WOUTERS, M., RICHARD, M., BAAS, A., CARUSOTTO, I., ANDRE, R., DANG, L. S. & DEVEAUD-PLERAN, B. Quantized vortices in an exciton-polariton condensate. *Nat Phys* **4**, 706–710 (2008).
3. AMO, A., LEFRÈRE, J., PIGEON, S., ADRADOS, C., CIUTI, C., CARUSOTTO, I., HOUDRÉ, R., GIACOBINO, E. & BRAMATI, A. Superfluidity of polaritons in semiconductor microcavities. *Nature Physics* **5**, 805–810 (2009).
4. SHELYKH, I. A., KAVOKIN, A. V., RUBO, Y. G., LIEW, T. C. H. & MALPUECH, G. Polariton polarization-sensitive phenomena in planar semiconductor microcavities. *Semiconductor Science and Technology* **25**, 013001 (2010).
5. SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J., STEVENSON, R. M., SKOLNICK, M. S., WHITTAKER, D. M. & ROBERTS, J. S. Angle-Resonant Stimulated Polariton Amplifier. *Physical Review Letters* **84**, 1547 (2000).
6. DASBACH, G., BAARS, T., BAYER, M., LARIONOV, A. & FORCHEL, A. Coherent and incoherent polaritonic gain in a planar semiconductor microcavity. *Physical Review B* **62**, 13076 (2000).
7. LAGOUDAKIS, P. G., SAVVIDIS, P. G., BAUMBERG, J. J., WHITTAKER, D. M., EASTHAM, P. R., SKOLNICK, M. S. & ROBERTS, J. S. Stimulated spin dynamics of polaritons in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **65**, 161310 (2002).
8. RENUCCI, P., AMAND, T., MARIE, X., SENELLART, P., BLOCH, J., SERMAGE, B. & KAVOKIN, K. V. Microcavity polariton spin quantum beats without a magnetic field : A manifestation of Coulomb exchange in dense and polarized polariton systems. *Physical Review B* **72**, 075317 (2005).

9. SOLNYSHKOV, D. D., SHELYKH, I. A., GLAZOV, M. M., MALPUECH, G., AMAND, T., RENUCCI, P., MARIE, X. & KAVOKIN, A. V. Nonlinear effects in spin relaxation of cavity polaritons. *Semiconductors* **41**, 1080–1091 (2007).
10. KASPRZAK, J., ANDRÉ, R., DANG, L. S., SHELYKH, I. A., KAVOKIN, A. V., RUBO, Y. G., KAVOKIN, K. V. & MALPUECH, G. Build up and pinning of linear polarization in the Bose condensates of exciton polaritons. *Physical Review B* **75**, 045326 (2007).
11. VÖRÖS, Z., SNOKE, D. W., PFEIFFER, L. & WEST, K. Direct Measurement of Exciton-Exciton Interaction Energy. *Physical Review Letters* **103**, 016403 (2009).
12. BOBRYsheva, A. I., MIGLEI, M. F. & SHMIGLYUK, M. I. On the Bi-Exciton Formation in Crystals. *Physica Status Solidi (b)* **53**, 71–84 (1972).
13. CIUTI, C., SAVONA, V., PIERMAROCCHI, C., QUATTROPANI, A. & SCHWENDIMANN, P. Role of the exchange of carriers in elastic exciton-exciton scattering in quantum wells. *Physical Review B* **58**, 7926 (1998).
14. COMBESCOT, M., BETBEDER-MATIBET, O. & COMBESCOT, R. Bose-Einstein Condensation in Semiconductors : The Key Role of Dark Excitons. *Physical Review Letters* **99**, 176403 (2007).
15. SCHUMACHER, S., KWONG, N. H. & BINDER, R. Influence of exciton-exciton correlations on the polarization characteristics of polariton amplification in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **76**, 245324 (2007).
16. WOUTERS, M. Resonant polariton-polariton scattering in semiconductor microcavities. *Physical Review B* **76**, 045319 (2007).
17. GLAZOV, M. M., OUERDANE, H., PILOZZI, L., MALPUECH, G., KAVOKIN, A. V. & D'ANDREA, A. Polariton-polariton scattering in microcavities : A microscopic theory. *Physical Review B* **80**, 155306 (2009).
18. VLADIMIROVA, M., CRONENBERGER, S., SCALBERT, D., KAVOKIN, K. V., MIARD, A., LEMAÎTRE, A., BLOCH, J., SOLNYSHKOV, D., MALPUECH, G. & KAVOKIN, A. V. Polariton-polariton interaction constants in microcavities. *Physical Review B* **82**, 075301 (2010).
19. SHEN, Y. R. *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley-Interscience, 2002).
20. KAVOKIN, K., RENUCCI, P., AMAND, T., MARIE, X., SENELLART, P., BLOCH, J. & SERMAGE, B. Linear polarisation inversion : A signature of Coulomb scattering of cavity polaritons with opposite spins. *physica status solidi (c)* **2**, 763–767 (2005).
21. DASBACH, G., DIEDERICHS, C., TIGNON, J., CIUTI, C., ROUSSIGNOL, P., DELALANDE, C., BAYER, M. & FORCHEL, A. dans *Quantum Electronics and Laser Science Conference, 2005. QELS '05* 83–85 Vol. 1 (2005).
22. DIEDERICHS, C., TIGNON, J., DASBACH, G., CIUTI, C., LEMAÎTRE, A., BLOCH, J., ROUSSIGNOL, P. & DELALANDE, C. Parametric oscillation in vertical triple microcavities. *Nature* **440**, 904–907 (2006).
23. ROMANELLI, M., LEYDER, C., KARR, J. P., GIACOBINO, E. & BRAMATI, A. Four Wave Mixing Oscillation in a Semiconductor Microcavity : Generation of Two Correlated Polariton Populations. *Physical Review Letters* **98**, 106401–4 (2007).



# Conclusion générale

Nous avons étudié dans cette thèse deux approches de structuration des microcavités visant à contourner les restrictions imposées dans les microcavités planaires pour l'observation de phénomènes paramétriques. Les deux approches, la gravure latérale et le couplage de plusieurs cavités, nous permettent d'observer les processus paramétriques en pompant en incidence normale, ce qui permet d'envisager la fabrication d'un dispositif intégré. La génération paramétrique n'est plus limitée au régime de couplage fort, ce qui relâche les contraintes en température de fonctionnement. Les faisceaux générés peuvent être tout à fait dégénérés en énergie, ce qui est favorable à l'observation des corrélations d'intensité sur les champs lumineux sortants.

Dans la première approche de structuration présentée au chapitre 3, nous avons étudié des microcavités gravées en forme de fils. La gravure crée un confinement latéral de la lumière, qui conduit à une quantification et à l'apparition d'une collection de modes de polaritons. De plus, l'anisotropie des fils lève la dégénérescence en polarisation de chaque branche. Nous avons montré dans ces fils photoniques l'existence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie, et inversant la polarisation. Le comportement spectral indique sans ambiguïté que l'énergie et le vecteur d'onde dans le plan des couches sont conservés, ce qui caractérise le mécanisme paramétrique et son accord de phase. Nous avons mesuré le comportement en puissance de l'émission non-linéaire et nous l'avons confronté avec succès avec un modèle où les polaritons de la pompe, du signal et du complémentaire sont couplés non-linéairement, en parfaite analogie avec un milieu optique non-linéaire en  $\chi^{(3)}$ . Nous avons enfin mesuré les fluctuations d'intensité des faisceaux générés et étudié les corrélations. Le modèle de polaritons en interaction prédit l'existence de corrélations quantiques entre les fluctuations du signal et du complémentaire dans le cas idéal, que nous n'observons pas en pratique à cause d'un fort excès de bruit sur chaque faisceau. La comparaison avec le modèle indique que cet excès de bruit trouve sa source dans le réservoir excitonique associé à chaque mode, plutôt qu'à un déséquilibre en intensité. Ceci valide l'approche de structuration pour obtenir des faisceaux équilibrés. À ce stade, nous sommes amenés à conclure que l'origine de ces excès de bruit doit être approfondie pour pouvoir être maîtrisée et obtenir une source de photons jumeaux.

La seconde approche de structuration que nous étudions est le couplage de plusieurs microcavités planaires empilées. La transmission non-nulle du miroir intermédiaire permet l'apparition de modes délocalisés sur toute la structure. Comme dans les fils, ces modes supplémentaires permettent d'observer la génération paramétrique dégénérée en énergie, en pompant en incidence normale.

Au chapitre 4, nous avons présenté l'étude de l'oscillation paramétrique dans les

microcavités couplées. Nous avons montré l'existence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie à basse température, et validé son caractère paramétrique par des mesures de corrélations. Puis nous avons procédé à l'analyse d'une microcavité couplée conçue pour la génération paramétrique optique à température ambiante. Un échantillon prototype de microcavité double nous a permis d'étudier les propriétés spectrales d'une telle structure, et en particulier le comportement non-linéaire de l'exciton. À partir de ces mesures, nous avons modélisé la non-linéarité de l'exciton en nous appuyant sur un modèle de système à deux niveaux. Dans ce cadre, la non-linéarité provient de la saturation de la transition excitonique. Ce modèle nous a permis d'interpréter les mesures réalisées en excitation résonnante. Finalement, à la lumière de ce modèle, nous avons examiné les conditions nécessaires à l'observation du régime d'oscillation paramétrique, en nous efforçant de prévoir les caractéristiques de l'échantillon qui permettra de les atteindre. Un échantillon contenant notamment un plus grand nombre de puits quantiques devrait satisfaire les conditions que nous avons identifiées.

Enfin, nous avons présenté une étude détaillée du comportement en polarisation de la diffusion paramétrique dégénérée en énergie dans une microcavité planaire triple. Un faisceau de pompe est diffusé par une sonde vers un complémentaire de même énergie et respectant la conservation du vecteur d'onde. Le comportement de ce complémentaire, autant en puissance qu'en polarisation, correspond à un modèle simple d'interaction entre polaritons, analogue à un milieu optique non-linéaire en  $\chi^{(3)}$ . Les mesures de l'efficacité de la diffusion paramétrique nous permettent d'évaluer le rapport des potentiels d'interaction  $V_1$  et  $V_2$  entre polaritons de polarisations circulaires identiques ou opposées, respectivement. L'estimation des valeurs relatives de ces potentiels est une clé de la compréhension des mécanismes fondamentaux ayant lieu entre polaritons. La méthode d'estimation que nous avons présentée est précise et pratique. Elle nous a permis d'étudier le rapport  $V_2/V_1$  sur un large gamme de désaccords, complétant ainsi d'autres mesures très récentes et les étendant sur des gammes de désaccord inexplorées.

Ainsi, les microcavités structurées par gravure ou par couplage sont prometteuses pour ce qui est d'obtenir une source compacte réalisant l'oscillation paramétrique optique générant des photons jumeaux. À court terme, les recherches qui prolongeront ce travail pourront valider les prévisions concernant le fonctionnement à température ambiante. Un tel oscillateur paramétrique pourrait être associé à un dispositif d'injection électrique pour réaliser un oscillateur tout-intégré, ce qui constitue un projet intéressant. Approfondir l'origine des sources de bruit est aussi un projet tout à fait exaltant, qui demandera certainement d'affiner les éléments pris en compte dans le modèle de l'interaction entre polaritons, et les mesures correspondantes. À terme, on peut envisager de maîtriser ces sources de bruit pour contrôler l'existence du régime quantique sur les faisceaux générés.

## Annexe A

# Effets des pertes sur les corrélations entre deux faisceaux

Dans cette annexe, nous montrons comment les pertes optiques sur deux faisceaux “dégradent” les corrélations d’intensité entre ces faisceaux. Nous montrons particulièrement que des pertes déséquilibrées sont très défavorables.

Considérons par exemple deux faisceaux d’intensités moyennes  $I_1$  et  $I_2$ . On note  $S_1$  et  $S_2$  leurs spectres de bruit normalisés au bruit quantique standard (on omet la dépendance en fréquence des spectres par soucis de clarté). Le spectre de bruit de la différence d’intensité, également normalisé au bruit quantique standard, vaut :

$$S_{I_2-I_1} = \frac{I_1 S_1 + I_2 S_2 - 2\sqrt{I_1 I_2} \Re(S_{I_1 I_2})}{I_1 + I_2} \quad (\text{A.1})$$

$$= \frac{I_1(1+Q_1) + I_2(1+Q_2) - 2\sqrt{I_1 I_2} \Re(S_{I_1 I_2})}{I_1 + I_2} \quad (\text{A.2})$$

où le terme  $S_{I_1 I_2}$  est la transformée de Fourier de la corrélation  $C_{I_1 I_2}$ .

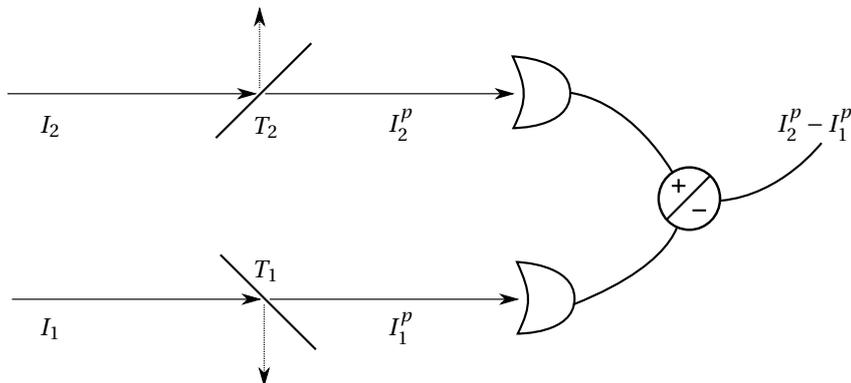


FIGURE A.1 – Pertes sur une paire de faisceaux corrélées, représentées par des transmissions  $T_{1,2}$ .

Après des pertes représentées par des coefficients de transmission  $T_{1,2}$  (figure A.1), le spectre de bruit normalisé devient :

$$S_{I_2-I_1}^p = \frac{T_1 I_1 (1 + T_1 Q_1) + T_2 I_2 (1 + T_2 Q_2) - 2 T_1 T_2 \sqrt{I_1 I_2} \Re(S_{I_1 I_2})}{T_1 I_1 + T_2 I_2} \quad (\text{A.3})$$

On note que, dans les deux premiers termes, la contribution de chaque faisceau individuel se rapproche du bruit quantique standard. Mais on note également que le terme de corrélations entre les spectres, proportionnel à  $\Re(S_{I_1 I_2})$ , se retrouve affecté d'un coefficient  $T_1 T_2$ . Ce terme non seulement dégrade la corrélation dès que  $T_1$  et  $T_2$  sont plus petits que 1, mais les dégrade d'autant plus que  $T_1$  et  $T_2$  ne sont pas égaux.

Pour concrétiser ces remarques, considérons le cas particulier où, avant les pertes, les faisceaux sont équilibrés en intensité moyenne ( $I_1 = I_2 = I$ ), équilibrés en bruit individuels ( $S_1 = S_2 = S$ ) et parfaitement quantiquement corrélés ( $S_{I_2-I_1} = 0$ ). Le spectre normalisé après pertes dépend de trois paramètres :  $S$ ,  $T_1$  et  $T_2$ . Il s'écrit :

$$S_{I_2-I_1}^p = \frac{T_1 (1 + T_1 Q) + T_2 (1 + T_2 Q) - 2 T_1 T_2 S}{(T_1 + T_2)} \quad (\text{A.4})$$

Supposons tout d'abord que les pertes sont équilibrées :  $T_1 = T_2 = T$ . Alors le spectre devient :

$$\left( S_{I_2-I_1}^p \right)_{T_1=T_2=T} = 1 - T \quad (\text{A.5})$$

Si  $T = 1$ , on retrouve la corrélation quantique parfaite, mais à l'opposé si  $T \rightarrow 0$ , le spectre tend linéairement vers le bruit quantique standard. La figure A.2 illustre ce comportement.

Supposons maintenant que les pertes ne sont plus équilibrées. Prenons le cas extrême où il n'y a des pertes que sur le faisceau 1 :  $T_2 = 1$ ,  $T_1 \leq 1$ . Dans ce cas, le spectre devient :

$$\left( S_{I_2-I_1}^p \right)_{T_1 \leq 1, T_2=1} = \frac{1 - T_1}{1 + T_1} (1 + (1 - T_1) Q) \quad (\text{A.6})$$

Si  $T_1 = 1$ , on retrouve encore logiquement la corrélation quantique parfaite. Par contre, dès que  $T_1 < 1$ , le spectre de la différence d'intensité est pollué par le bruit du faisceau individuel décrit par le facteur de Mandel  $Q = S - 1$ . Il n'est pas rare que  $Q$  soit très grand devant 1, c'est le cas par exemple dans les mesures sur les fils photoniques au chapitre 3. Dans ce cas, un déséquilibre sur les pertes est dramatique pour la mesure de corrélations entre deux faisceaux. La figure A.2 illustre ce comportement avec  $Q = 100$ . Dans cet exemple, dès que  $T_1 < 0.87$ , le spectre de bruit mesuré devient plus grand que le bruit quantique standard.

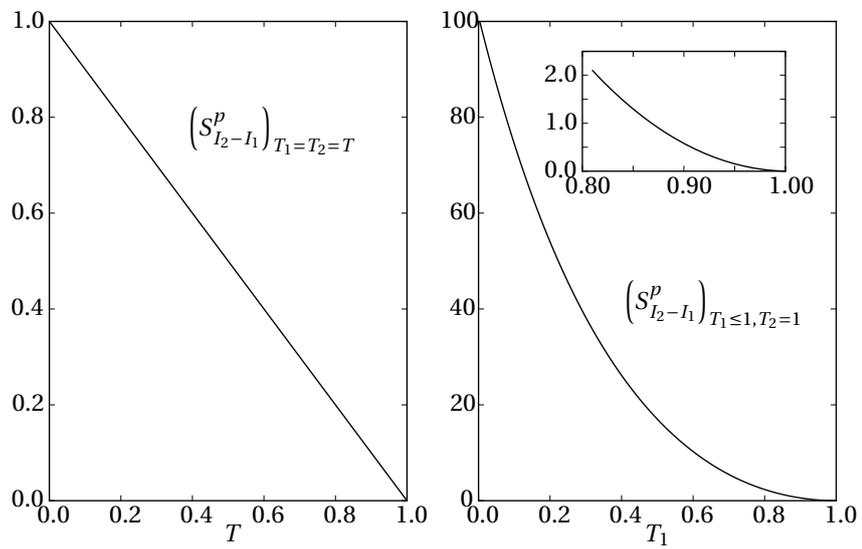


FIGURE A.2 – Spectres de bruit en présence de pertes, représentées par une transmittivité inférieure à 1 sur les deux faisceaux, ou un seul des deux faisceaux, avec  $Q=100$ .



## Annexe B

# Calibration de la polarisation d'excitation

Dans cette annexe, nous présentons brièvement une mesure de l'état de polarisation d'un faisceau, qui nous permet d'estimer l'angle de polarisation linéaire, et la légère composante elliptique des faisceaux. La prise en compte de cette composante elliptique est importante dans l'interprétation des résultats du chapitre 5 où nous étudions le comportement en polarisation du processus de diffusion paramétrique. En sortie du laser MIRA, le faisceau est polarisé horizontalement. Après l'isolateur de Faraday, la polarisation est toujours linéaire, mais tournée de  $45^\circ$ . Pour différentes séries de mesures, on utilise simplement des lames demi-onde ou quart d'onde adaptées aux longueurs d'onde de travail pour modifier l'état de polarisation du faisceau. Changer l'état de polarisation du faisceau modifie aussi les coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission des lames séparatrices traversées, ce qui fait qu'on ne peut pas obtenir arbitrairement n'importe quelle polarisation linéaire : en pratique le faisceau d'excitation est généralement dans une polarisation légèrement elliptique.

Nous présentons dans la figure B.1 un exemple de calibration précise pour le faisceau de pompe juste avant l'échantillon, alors que la polarisation de ce faisceau est globalement linéaire, inclinée à  $45^\circ$ . On utilise la méthode usuelle du polariseur tournant. On peut montrer que la mesure de l'intensité transmise en fonction de l'angle du polariseur s'écrit :

$$\cos(\psi)^2 \cos(\theta - \alpha)^2 + \sin(\psi)^2 \sin(\theta - \alpha)^2 \quad (\text{B.1})$$

où  $\alpha$  désigne l'angle que fait le grand-axe de l'ellipse avec l'horizontale et  $\psi$  l'angle dont la tangente vaut le rapport du petit-axe sur le grand-axe de l'ellipse.  $\psi$  caractérise le degré d'ellipticité,  $\alpha$  désigne la direction globale de l'ellipse. Dans cet exemple, nous cherchions à obtenir une polarisation la plus proche d'une polarisation linéaire orientée à  $-45^\circ$ , et nous avons obtenu une polarisation elliptique avec les angles  $\alpha = -44.4^\circ$  et  $\psi = 18.6^\circ$ .

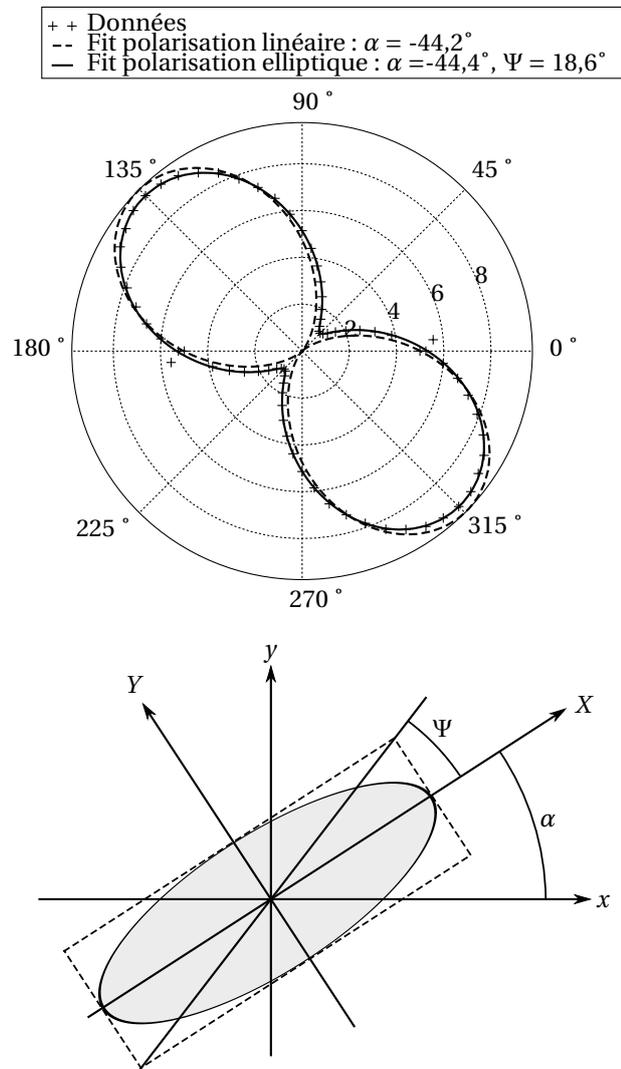


FIGURE B.1 – Calibration de la polarisation de la pompe en amont de l'échantillon, avec la méthode du polariseur tournant. Dans cet exemple, nous cherchions à obtenir une polarisation la plus proche d'une polarisation linéaire orientée à  $-45^\circ$ , et nous avons obtenu une polarisation elliptique avec les angles  $\alpha = -44,4^\circ$  et  $\psi = 18,6^\circ$ .

## Annexe C

# Calibration des dispersions

Dans cette annexe, nous présentons les relations géométriques qui permettent de calibrer l'échelle angulaire sur les dispersions obtenues avec le spectromètre. Toutes les relations s'appliquent à une cavité sans puits quantiques (en pratique, ceci correspond à se placer à un désaccord avec l'exciton très grand).

### C.1 Relation de passage entre la microcavité et l'extérieur

L'énergie  $E$  est conservée en sortant de la cavité :

$$E = \frac{\hbar c k_c}{n_c} \quad (\text{C.1})$$

$$= \frac{\hbar c k_0}{n_0} \quad (\text{C.2})$$

où  $k_c$  et  $n_c$  sont le vecteur d'onde et l'indice dans la cavité, et  $k_0$  et  $n_0$  sont les mêmes quantités à l'extérieur de l'échantillon.

On en déduit en particulier une équation de conservation de l'énergie :

$$\frac{k_c}{n_c} = \frac{k_0}{n_0} \quad (\text{C.3})$$

Dans la cavité, il y a la quantification du vecteur d'onde  $k_{c\perp}$ , ce qui permet d'écrire la dispersion de  $E$  en fonction de l'énergie  $E_0$  en incidence normale, et de l'angle  $\theta_c$  que fait le vecteur d'onde  $k_c$  avec la normale :

$$E = \frac{\hbar c}{n_c} \sqrt{k_{c\perp}^2 + k_{c\parallel}^2} \quad (\text{C.4})$$

$$= \frac{\hbar c}{n_c} k_{c\perp} \sqrt{1 + \left(\frac{k_{c\parallel}}{k_{c\perp}}\right)^2} \quad (\text{C.5})$$

$$= E_0 \sqrt{1 + \left(\frac{k_{c\parallel}}{k_{c\perp}}\right)^2} \quad (\text{C.6})$$

$$= E_0 \sqrt{1 + \tan(\theta_c)^2} \quad (\text{C.7})$$

Notons qu'à l'extérieur de la cavité,  $\frac{\hbar c}{n_0} k_{0\perp} \neq E_0$ . En effet, la quantification n'est valable que pour le vecteur d'onde  $k_{c\perp}$ , mais pas  $k_{0\perp}$  !

Enfin, la loi de Snell-Descartes donne une loi de conservation pour les vecteurs d'onde dans le plan des couches :

$$n_c \sin(\theta_c) = n_0 \sin(\theta_0) \quad (\text{C.8})$$

$$\Leftrightarrow n_c \frac{k_{c\parallel}}{k_c} = n_0 \frac{k_{0\parallel}}{k_0} \quad (\text{C.9})$$

$$\Leftrightarrow k_{c\parallel} = k_{0\parallel} = k_{\parallel} \quad (\text{C.10})$$

## C.2 Calibration de la caméra

L'ordonnée de l'image acquise par la caméra dans le plan de Fourier correspond à  $\tan(\theta_0) = \frac{k_{\parallel}}{k_{0\perp}}$ . On veut calibrer cet axe en utilisant la dispersion d'une cavité nue  $E(\tan(\theta_0))$ .

Partons de l'équation C.7, reproduite ci-dessous :

$$E = E_0 \sqrt{1 + \left(\frac{k_{\parallel}}{k_{c\perp}}\right)^2} \quad (\text{C.11})$$

À partir de l'équation C.3, nous déduisons :

$$\left(\frac{k_{\parallel}}{k_{c\perp}}\right)^2 = \left(\left(\frac{n_c}{n_0}\right)^2 (\tan(\theta_0)^{-2} + 1) - 1\right)^{-1} \quad (\text{C.12})$$

En insérant ce résultat dans l'équation C.11, on trouve finalement :

$$E = E_0 \sqrt{\frac{1 + \tan(\theta_0)^2}{1 + \left(1 - \left(\frac{n_0}{n_c}\right)^2\right) \tan(\theta_0)^2}} \quad (\text{C.13})$$

Dans cette équation,  $n_c$  est fixé par la composition de l'échantillon et est donc connu. Étant donnée la dispersion expérimentale d'une cavité nue,  $E_0$  est un paramètre ajustable, tout comme les deux paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  de la relation affine qui relie l'index  $i$  de l'ordonnée du pixel de la caméra avec  $\tan(\theta_0)$  :  $\tan(\theta_0) = \alpha + \beta i$ .

## C.3 Autres ordonnées

L'échelle naturelle de l'image du plan de Fourier est  $\tan(\theta_0)$ .

Expérimentalement, l'ouverture numérique du système de visualisation donne accès à  $|\tan(\theta_0)| \lesssim 0.3$ . On fait donc l'approximation correspondante  $\tan(\theta_0) \ll 1$ , ce qui donne  $\tan(\theta_0) \sim \theta_0$ . On peut donc donner directement une échelle satisfaisante en  $\theta_0$ .

On veut aussi disposer d'une échelle en  $k_{\parallel}$ . La transformation est la suivante :

$$k_{\parallel} = k_0 \sqrt{\frac{\tan(\theta_0)^2}{1 + \tan(\theta_0)^2}} \quad (\text{C.14})$$

On utilise  $\tan(\theta_0) \ll 1$  pour linéariser la racine carré.  $\tan(\theta_0) \ll 1$  donne également  $k_0 \sim \frac{n_0 E_0}{hc}$ , ce qui permet d'estimer  $k_{//}$  par l'expression suivante, linéaire :

$$k_{//} = \frac{n_0 E_0}{hc} \tan(\theta_0) \quad (\text{C.15})$$

Les échelles angulaires des dispersions expérimentales ou des images du plan de Fourier présentées dans ce manuscrit de thèse ont été calibrées par cette méthode.



## Annexe D

# Changement de base dans le modèle de polaritons en interaction

Au chapitre 3, nous avons établi le système d'équations qui décrit l'évolution couplée des fluctuations des opérateurs de polaritons pompe, signal et complémentaire. Ce système s'écrit matriciellement (équation 3.35) :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \delta p_s \\ \delta p_s^\dagger \\ \delta p_c \\ \delta p_c^\dagger \\ \delta p_p \\ \delta p_p^\dagger \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} \delta p_s \\ \delta p_s^\dagger \\ \delta p_c \\ \delta p_c^\dagger \\ \delta p_p \\ \delta p_p^\dagger \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \delta P_s^{in} \\ \delta P_s^{in\dagger} \\ \delta P_c^{in} \\ \delta P_c^{in\dagger} \\ \delta P_p^{in} \\ \delta P_p^{in\dagger} \end{pmatrix}$$

Plutôt que les opérateurs complexes, nous souhaitons étudier les quadratures  $\alpha_k$  et  $\beta_k$  (équations 3.39) :

$$\alpha_k = \frac{1}{2}(\delta p_k + \delta p_k^\dagger)$$
$$\beta_k = \frac{1}{2i}(\delta p_k - \delta p_k^\dagger)$$

Pour cela, nous définissons la matrice  $P$  qui permet de passer de la base des fluctuations complexes des champs à la base des fluctuations sur les axes réels et imaginaires :

$$\begin{pmatrix} \delta \alpha_s \\ \delta \beta_s \\ \delta \alpha_c \\ \delta \beta_c \\ \delta \alpha_p \\ \delta \beta_p \end{pmatrix} = P \begin{pmatrix} \delta p_s \\ \delta p_s^\dagger \\ \delta p_c \\ \delta p_c^\dagger \\ \delta p_p \\ \delta p_p^\dagger \end{pmatrix} \quad (D.1)$$

## 202 Annexe D. Changement de base dans le modèle de polaritons en interaction

$P$  s'écrit :

$$P = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ \frac{1}{i} & \frac{-1}{i} & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{i} & \frac{-1}{i} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{i} & \frac{-1}{i} \end{pmatrix} \quad (\text{D.2})$$

L'évolution des quadratures réelles et imaginaires correspond alors au système suivant :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \delta\alpha_s \\ \delta\beta_s \\ \delta\alpha_c \\ \delta\beta_c \\ \delta\alpha_p \\ \delta\beta_p \end{pmatrix} = PMP^{-1} \begin{pmatrix} \delta\alpha_s \\ \delta\beta_s \\ \delta\alpha_c \\ \delta\beta_c \\ \delta\alpha_p \\ \delta\beta_p \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \delta\alpha_s^{in} \\ \delta\beta_s^{in} \\ \delta\alpha_c^{in} \\ \delta\beta_c^{in} \\ \delta\alpha_p^{in} \\ \delta\beta_p^{in} \end{pmatrix} \quad (\text{D.3})$$

Enfin, on résoud ce système dans l'espace de Fourier<sup>1</sup>, où  $\delta\alpha_k(t) = \int \delta\alpha_k(\omega) e^{i\omega t} d\omega$ ,  $\omega$  est la fréquence d'analyse et  $I$  est la matrice identité :

$$\begin{pmatrix} \delta\alpha_s(\omega) \\ \delta\beta_s(\omega) \\ \delta\alpha_c(\omega) \\ \delta\beta_c(\omega) \\ \delta\alpha_p(\omega) \\ \delta\beta_p(\omega) \end{pmatrix} = (i\omega I - PMP^{-1})^{-1} \begin{pmatrix} \delta\alpha_s^{in}(\omega) \\ \delta\beta_s^{in}(\omega) \\ \delta\alpha_c^{in}(\omega) \\ \delta\beta_c^{in}(\omega) \\ \delta\alpha_p^{in}(\omega) \\ \delta\beta_p^{in}(\omega) \end{pmatrix} \quad (\text{D.4})$$

Résoudre le système se résume donc à inverser  $i\omega I - PMP^{-1}$ . Les résultats numériques sont présentés dans la partie 3.7.4.

---

1. On peut faire une transformée de Fourier à ce stade parce que les  $\alpha_k$  et  $\beta_k$  dans ce système sont des grandeurs réelles. Ce n'est pas le cas des  $\delta p_k$ , ce qui interdit de passer dans l'espace de Fourier directement dans le système 3.34.



TIMOTHÉE LECOMTE

## **Microcavités semiconductrices structurées pour la génération paramétrique optique**

### **Résumé :**

Cette thèse est consacrée aux phénomènes paramétriques optiques dans les microcavités de semiconducteurs structurées. Les non-linéarités des excitons des puits quantiques, associées au confinement optique, permettent d'observer des processus paramétriques sous excitation résonnante. Dans le régime d'oscillation, un couple de faisceaux est généré, dont les corrélations d'intensité sont potentiellement quantiques.

Dans les cavités planaires, les conditions d'oscillation (angle de pompage, couplage fort) sont restrictives, et les corrélations sont limitées par le déséquilibre en intensité des faisceaux produits.

Nous étudions deux approches de structuration pour lever ces restrictions. Dans la première, des microcavités sont gravées en fils. Le confinement latéral fait apparaître une collection de modes. Nous montrons dans ces fils l'existence de l'oscillation paramétrique dégénérée en énergie et mesurons les corrélations d'intensité des faisceaux générés. Les observations sont confrontées quantitativement à un modèle de polaritons en interaction.

Dans la seconde approche, nous étudions des microcavités couplées. Les modes sont délocalisés sur les multiples cavités. Nous présentons l'oscillation paramétrique à basse température. Puis nous analysons un échantillon conçu pour la génération paramétrique à température ambiante. L'étude spectrale valide un modèle de système à 2 niveaux, utilisé pour prévoir les conditions d'observation du régime d'oscillation. Enfin, nous présentons une étude en polarisation de la génération paramétrique. Nous mesurons, sur une large gamme de paramètres, le rapport des potentiels d'interaction entre excitons qui conservent ou non la polarisation.

### **Mots clefs :**

|                |                                  |
|----------------|----------------------------------|
| Microcavité    | Fils photoniques                 |
| Semiconducteur | Oscillation paramétrique optique |
| Polariton      | Corrélations quantiques          |