

# Boîtes quantiques – modèle du système à deux niveaux

Les boîtes quantiques confinent les porteurs de charge dans les trois dimensions de l'espace. Pour l'optique, elles sont en général produites en insérant un cristal de semiconducteur de faible bande interdite (gap) dans un semiconducteur à plus grand gap ou dans un isolant (solution, matrice vitreuse, air, vide). Le semiconducteur de faible gap constitue alors un piège pour les électrons et les trous. Lorsque ce cristal atteint des tailles nanométriques, le confinement impose une quantification des niveaux d'énergie de la paire électron-trou piégée dans la boîte. Cette structure émet alors de la lumière caractérisée par des raies spectrales discrètes, à la manière des spectres atomiques, qui lui valent le surnom d'atome artificiel.

Un tel objet reste cependant à l'état solide, il est couplé à son environnement et affecté, entre autres, par le bain de phonons du réseau cristallin qui le constitue et par son environnement électrostatique. Les effets de ce couplage dépendent de la température, des impuretés et des défauts inhérents à la fabrication. Si cet environnement est essentiel pour permettre le piégeage des charges et la relaxation de leur énergie au sein de la boîte quantique, il est également responsable de la dégradation des qualités de cohérence des photons émis. La limitation de ces effets pour atteindre les meilleures performances de cohérence et d'indiscernabilité des photons est indispensable pour songer à utiliser ces émetteurs en optique quantique.

Par conséquent, le système est étudié à des températures cryogéniques et les boîtes sont excitées optiquement, en accordant le laser d'excitation à résonance avec leurs niveaux de plus basse énergie. Dans ces conditions, le comportement de la boîte quantique peut être décrit par le modèle du système à deux niveaux, qui constitue le socle théorique à partir duquel nous allons développer les expériences présentées dans les chapitres suivants. Ce modèle définit notamment, à basse puissance d'excitation, le régime de diffusion Rayleigh dans lequel les photons du laser d'excitation sont diffusés élastiquement et peuvent avoir des temps de cohérence très longs.

1.1	Propriétés générales des boîtes quantiques . . . . .	20
1.2	Fabrication et principales caractéristiques des boîtes . . . . .	21
1.3	Mécanismes de relaxation, modèle du système à deux niveaux . . . . .	27
1.4	Excitation résonnante : une approche théorique . . . . .	31
	Conclusion du chapitre . . . . .	41

## 1.1 Propriétés générales des boîtes quantiques

### 1.1.1 Potentiel cristallin et notion de bande

Pour déterminer la structure des niveaux d'énergie d'un électron dans un cristal, on résout l'équation de Schrödinger indépendante du temps :

$$H\psi(\vec{r}) = E\psi(\vec{r}) \quad (1.1.1)$$

où  $\psi$  est la fonction d'onde de l'électron dans le cristal et  $H$  est l'hamiltonien :

$$H = \frac{\vec{p}^2}{2m} + V(\vec{r}) \quad (1.1.2)$$

avec  $V(\vec{r})$  le potentiel d'interaction entre l'électron et le cristal. Du fait de la structure périodique du cristal, le théorème de Bloch établit que les fonctions d'onde peuvent se mettre sous la forme :

$$\psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) = u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \quad (1.1.3)$$

où  $\vec{k}$  est un vecteur d'onde, souvent appelé moment cristallin,  $n$  est l'indice de bande. Les valeurs propres  $E_n(\vec{k})$  associées aux vecteurs  $\psi_{n,\vec{k}}$  sont appelées bandes d'énergie du cristal, que l'on peut en général approcher avec une loi parabolique pour un vecteur d'onde au voisinage de  $\vec{k} = 0$  :

$$E_{n,\vec{k}} = E_{n,0} + \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m_{e,n}^*} \quad (1.1.4)$$

où  $m_{e,n}^*$  est la masse effective de l'électron dans la bande  $n$ .

### 1.1.2 Effets du confinement

A priori, pour une bande donnée, d'après (1.1.4), la relation de dispersion dans le matériau massif s'écrit :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \quad (1.1.5)$$

Cette relation de dispersion donne une densité d'états  $\rho(E) \propto \sqrt{E}$  comme on peut le voir sur la figure 1.1.

On peut toutefois confiner l'électron suivant les directions  $x$ ,  $y$  et  $z$  :

**Puits quantique (2D) :** si l'on confine l'électron suivant  $z$ , par exemple, le vecteur d'onde de l'électron est quantifié dans la direction  $z$  et prend des valeurs discrètes tandis que le mouvement reste libre dans le plan  $xy$ . La relation de dispersion s'écrit alors :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} (k_x^2 + k_y^2) + E_{z,n} \quad (1.1.6)$$

où  $n \in \mathbb{N}$  et les  $E_{z,n}$  correspondent aux niveaux d'énergie discrets dus au confinement suivant  $z$ , qui sont définis par la taille du piège. Pour un  $E_{z,n}$  donné, la densité d'états 2D est constante et définie pour  $E > E_{z,n}$ . La densité d'états finale est donc une fonction en marches d'escalier, où chaque marche correspond au passage de l'énergie  $E_{z,n}$  d'un état confiné.

**Fil quantique (1D) :** si le confinement a lieu suivant  $z$  et  $y$ , le mouvement ne reste libre que dans la direction  $x$ . La relation de dispersion s'écrit :

$$E = \frac{\hbar^2}{2m_e^*} k_x^2 + E_{y,m} + E_{z,n} \quad (1.1.7)$$

où  $m, n \in \mathbb{N}$ . Dans un fil quantique, pour chaque combinaison  $E_{m,n} = E_{y,m} + E_{z,n}$ , la densité d'états sera de la forme  $\rho(E) \propto 1/\sqrt{E - E_{m,n}}$ . Pour chaque  $E_{m,n}$  on obtient donc des pics similaires à ce qui est tracé sur la figure 1.1.

**Boîte quantique (0D) :** Enfin si l'on confine l'électron suivant toutes les directions, on obtient :

$$E = E_{x,l} + E_{y,m} + E_{z,n} \quad (1.1.8)$$

c'est-à-dire que l'énergie de l'électron est totalement quantifiée et les niveaux d'énergie sont définis par la taille du piège. La densité d'états n'est alors non nulle que lorsque l'énergie vaut  $E_{x,l} + E_{y,m} + E_{z,n}$ .

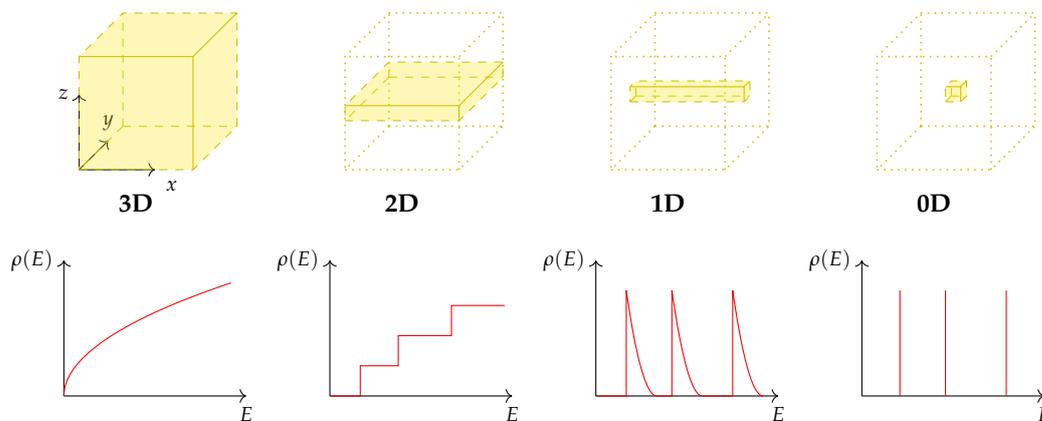


FIGURE 1.1 — Différents types de confinement et densités d'états associées.

## 1.2 Fabrication et principales caractéristiques des boîtes

### 1.2.1 Fabrication

Afin de confiner les porteurs de charge dans différentes directions, comme dans le paragraphe 1.1.2, l'idée est de fabriquer des hétérostructures dont une au moins des

dimensions caractéristiques sera plus petite que la longueur d'onde de De Broglie de l'électron. À basse température ( $T < 50$  K) dans des semiconducteurs comme le GaAs, celle-ci est supérieure à 100 nm. Pour des structures dont les dimensions sont de l'ordre de 10 nm, on observera donc des effets quantiques liés au confinement.

Les boîtes quantiques confinent les électrons dans les trois directions de l'espace. Pour cela, on fabrique des structures dont les trois dimensions sont de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Deux grandes familles de techniques existent : la synthèse chimique qui consiste à fabriquer les nanocristaux en solution sous la forme de colloïdes, et l'épitaxie où les nanocristaux sont fabriqués sur un substrat par dépôt de couches atomiques successives.

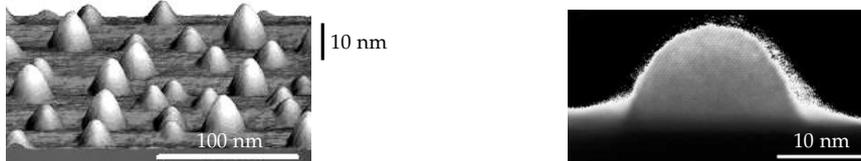
La synthèse chimique de colloïdes date des années 1980, et a commencé par la synthèse de microcristaux dans une matrice vitreuse [EKIMOV *et al.* 1985] puis directement en solution liquide [MURRAY *et al.* 1993] sous la forme de nanocristaux colloïdaux. Parmi les avantages de la synthèse chimique, on peut citer leur fabrication simple en grande quantité [Z. A. PENG & X. PENG 2001 ; TESSIER *et al.* 2015] ainsi que leur utilisation préférentielle pour de multiples applications, que ce soit comme traceurs en biologie [ÅKERMAN *et al.* 2002 ; BRUCHEZ *et al.* 1998 ; DUBERTRET *et al.* 2002], comme milieu à gain pour des lasers [EISLER *et al.* 2002 ; KLIMOV *et al.* 1999], pour fabriquer des diodes électroluminescentes [COE *et al.* 2002] ou des cellules photovoltaïques [GUR *et al.* 2005]. Cela leur confère un potentiel et un intérêt industriel très important. Le matériau le plus courant pour les nanocristaux colloïdaux est le CdSe et d'autres semiconducteurs II-VI, mais des semiconducteurs III-V comme l'InP sont promis à un bel avenir du fait de leur toxicité plus faible [TESSIER *et al.* 2015].

L'autre voie est la fabrication par épitaxie, qui consiste à déposer les couches atomiques une par une pour former un cristal. En jouant sur les paramètres de maille entre les différents matériaux, il est possible d'induire des contraintes conduisant à la formation d'îlots, ce qui correspond au mode de croissance Stranski-Krastanov (SK) [STRANSKI & KRASTANOV 1938]. Le couple de matériaux historiquement utilisé pour la fabrication de boîtes quantiques suivant la méthode SK est l'InAs/GaAs, employé depuis les années 1980 [GOLDSTEIN *et al.* 1985]. En effet, l'InAs a un paramètre de maille 7% supérieur au GaAs. En déposant de l'InAs sur un substrat de GaAs, comme représenté sur la figure 1.2, l'InAs va relaxer en îlots lorsque l'épaisseur moyenne de la couche d'InAs dépasse typiquement 1,7 monocouches [GÉRARD, GÉNIN *et al.* 1995]. On forme ainsi des structures telles que celles présentées sur la figure 1.3, avec une taille typique de l'ordre de 10 nm. Ces îlots sont ensuite recouverts de GaAs. Remarquez que cette méthode de croissance laisse un puits quantique en InAs appelé *couche de mouillage*.

L'épitaxie produit donc des échantillons macroscopiques solides, pouvant être gravés, contactés et manipulés plus aisément que des colloïdes. Cela offre l'avantage de pouvoir intégrer plus facilement les boîtes quantiques dans des structures photoniques, permettant d'étudier des effets d'électrodynamique quantique en cavité



FIGURE 1.2 — Étapes de fabrication de boîtes quantiques InAs/GaAs par la méthode SK.



(a) Îlots d'InAs sur un substrat de GaAs observés au microscope à force atomique (AFM) (source : *Nanostructure Materials & Devices Laboratory of University of Southern California*).

(b) Boîte quantique d'InAs sur du GaAs observée au microscope électronique en transmission (TEM) (source : *Institute for Microstructural Sciences, NRC, Canada*).

FIGURE 1.3 — Images de boîtes quantiques en InAs formées par épitaxie suivant la méthode SK sur du GaAs.

(*cavity quantum electrodynamics*, CQED) [LODAHL *et al.* 2004 ; REITHMAIER *et al.* 2004] ou des circuits logiques [BENTHAM *et al.* 2015 ; ZRENNER *et al.* 2002]. Les matériaux usuels pour l'épitaxie des boîtes quantiques sont les semiconducteurs III-V comme l'AlAs, l'InAs, le GaAs, qui offrent de nombreux avantages, notamment le fait que l'InAs/GaAs ont une différence de gap importante ( $\Delta E_g = 1,1$  eV) et les bons paramètres de maille pour la croissance par la méthode SK. Cela n'exclut pas l'utilisation de semiconducteurs IV comme le silicium et le germanium [EAGLESHAM & CERULLO 1990, à voir aussi pour les trois modes de croissance en hétéroépitaxie] et les II-VI comme le CdSe [XIN *et al.* 1996].

Depuis les années 1990, les boîtes quantiques peuvent aussi être fabriquées par épitaxie dite « de gouttelettes » (*droplet epitaxy*), qui produit des boîtes sans contraintes et sans couche de mouillage [KOGUCHI *et al.* 1991 ; WATANABE *et al.* 2000]. Elle permet également de fabriquer d'autres formes comme des anneaux ou des pyramides, suivant des axes cristallographiques non permis par la méthode SK [JO *et al.* 2012 ; SOMASCHINI *et al.* 2009].

Enfin, plusieurs technologies permettent de produire des boîtes quantiques épitaxiées : l'épitaxie par jets moléculaires (*Molecular Beam Epitaxy*, MBE) ou l'épitaxie en phase vapeur aux organométalliques (*Metalorganic Chemical Vapor Deposition*, MOCVD). Si la MOCVD permet une plus grande reproductibilité et une plus grande vitesse de croissance, la MBE permet en général de mieux maîtriser les conditions de croissance, ne serait-ce que parce qu'elle permet le suivi *in situ* de la croissance. La MBE est privilégiée pour nos échantillons.

### 1.2.2 Structure des niveaux d'énergie

Une boîte quantique n'est en réalité pas un puits infini de potentiel pour les porteurs de charge, comme dans le paragraphe 1.1.2. En pratique, on utilise une hétérostructure où un matériau de faible gap comme l'InAs (0,36 eV à 300 K) forme des nanocristaux à l'intérieur d'un matériau à plus grand gap comme le GaAs (1,42 eV à 300 K). Cela conduit à un diagramme d'énergie suivant la direction de croissance tel que celui représenté sur la figure 1.4. Les bords de bande associés aux matériaux massifs sont représentés en trait orange, sous la forme de pointillés dans le cas de l'InAs. Au niveau de la boîte quantique, on retrouve les états discrets, notés  $S_e$ ,  $P_e$  dans la bande de conduction et  $S_h$ ,  $P_h$  dans la bande de valence, qui sont dus au confinement de type 0D. Notez qu'en fonction de la profondeur du piège, qui dépend de la taille de la boîte quantique et des matériaux utilisés, les niveaux  $P$  ne sont pas nécessairement présents. Les aplats de couleur indiquent un continuum d'états. À plus haute énergie on retrouve ainsi la couche de mouillage en InAs qui correspond à un continuum 2D, puis le GaAs massif qui constitue un continuum 3D.

Ce diagramme d'énergie montre que les paires électron-trou restent piégées dans les niveaux discrets de la boîte quantique, avant de se recombiner radiativement par la transition  $S_e - S_h$ .

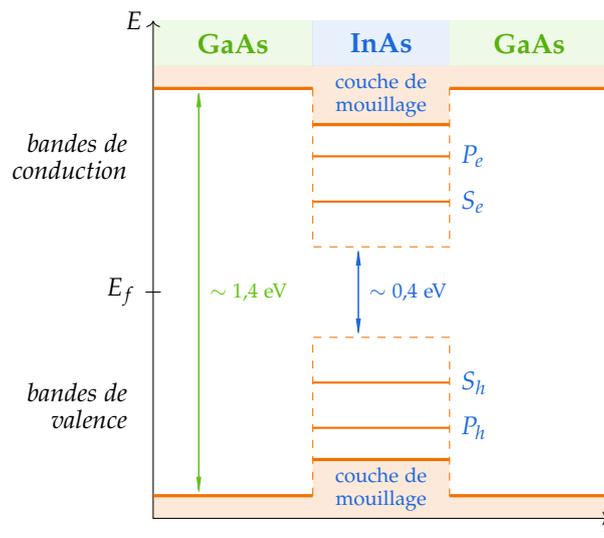


FIGURE 1.4 — Allure des niveaux d'énergie en fonction de la direction de croissance  $z$  pour une boîte quantique InAs/GaAs épitaxiée avec une couche de mouillage.  $E_f$  est l'énergie de Fermi.

La figure 1.5 donne l'allure de la densité d'états électroniques dans une boîte quantique. Des continums sont associés au GaAs, qui a la densité d'états d'un matériau massif, et à la couche de mouillage en InAs, qui est un puits quantique possédant une densité d'états constante ou en escalier (cf. figure 1.1). Pour des écarts

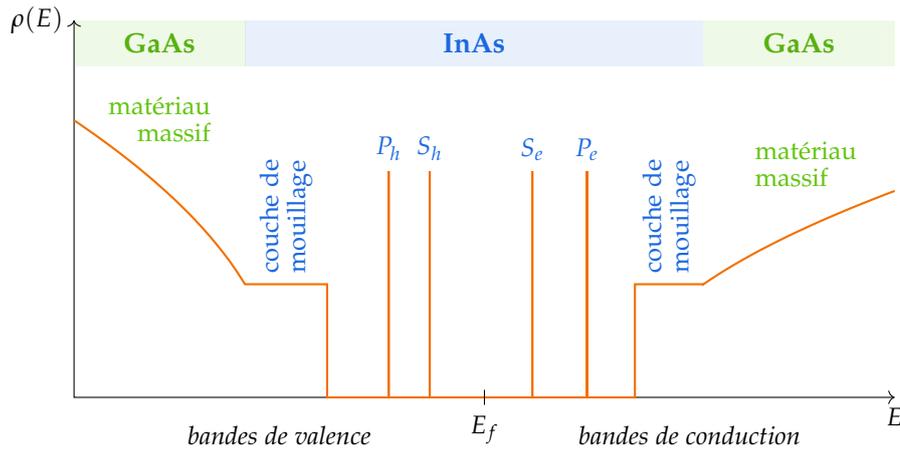


FIGURE 1.5 — Allure de la densité d'états électronique dans une boîte quantique épitaxiée InAs/GaAs avec une couche de mouillage.  $E_f$  est l'énergie de Fermi.

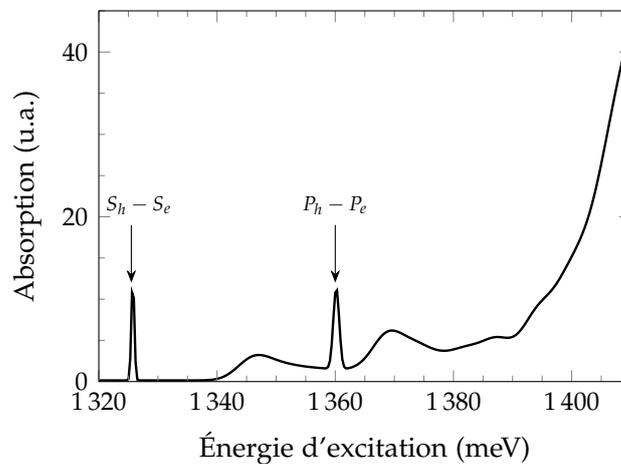


FIGURE 1.6 — Spectre d'absorption théorique d'une boîte quantique (reproduite de [VASANELLI 2002, figure 7.4, p. 110]).

d'énergie plus faibles, on retrouve les états discrets de la boîte quantique.

La densité d'états de la figure 1.5 est à relier au spectre d'absorption présenté sur la figure 1.6, qui est reproduit à partir de [VASANELLI 2002]. Il s'agit d'une courbe théorique décrivant le comportement typique de l'absorption par une boîte quantique InAs/GaAs en fonction de l'énergie d'excitation. Ses principales caractéristiques se retrouvent sur des mesures comme celles de [KAMMERER 2002 ; TODA *et al.* 1999]. Un premier pic d'absorption (ici à 1326 meV, c'est-à-dire 935 nm) correspond à la transition  $S_h - S_e$ , et un second à 1360 meV à  $P_h - P_e$ . D'autres pics plus larges, notamment à 1345 meV ou à 1370 meV, correspondent à des transitions croisées entre les niveaux  $S$  et  $P$  de la boîte et le continuum de la couche de mouillage. Ces transitions croisées constituent également le début du continuum visible à haute

énergie. Enfin, à très haute énergie, au-delà de 1400 meV, des transitions dans la couche de mouillage apparaissent, puis dans le GaAs massif — dont la bande interdite est large d'environ 1,5 eV à 10 K.

Ces échelles d'énergie sont assez typiques pour les boîtes InAs/GaAs. Avec nos échantillons, l'énergie de la transition  $S_h - S_e$  pourra varier de 1265 à 1330 meV (c'est-à-dire entre 930 et 980 nm).

### 1.2.3 Excitons dans les boîtes

Lorsqu'un photon est absorbé dans un matériau semi-conducteur, une paire électron-trou se forme. Du fait de leur charge opposée, ces deux particules s'attirent par interaction coulombienne et peuvent former un complexe hydrogénoïde appelé *exciton*. Dans les semi-conducteurs III-V massifs, l'énergie de liaison d'un exciton est typiquement de 10 meV, ce qui impose la plupart du temps des températures cryogéniques pour les observer (à 300 K,  $k_B T = 26$  meV). Dans le GaAs par exemple, l'énergie de liaison est de 4,7 meV.

L'exciton dans les semiconducteurs est fortement délocalisé ; on peut calculer le rayon de Bohr de l'exciton dans un matériau massif qui vaut :

$$a_{X,3D} = a_0 \varepsilon_r \frac{m_e}{m} \quad (1.2.1)$$

où  $a_0 = 0,529$  Å est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène,  $\varepsilon_r$  est la constante diélectrique du matériau,  $m_e$  est la masse de l'électron et  $m$  est la masse de la particule réduite :  $\frac{1}{m} = \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*}$ .

Le rayon de Bohr de l'exciton dans le GaAs vaut environ 115 Å et 240 Å dans l'InAs. Si l'on modélise la boîte par une sphère de rayon  $a_{BQ}$ , on peut distinguer deux régimes de confinement [EKIMOV *et al.* 1985] :

- un régime de confinement faible, pour lequel  $a_{X,3D} \ll a_{BQ}$ , pour lequel l'énergie de liaison due à l'interaction coulombienne prédomine sur l'énergie de confinement due au piège que constitue la boîte quantique,
- un régime de confinement fort, où  $a_{BQ} \ll a_{X,3D}$  et l'énergie de confinement prédomine sur l'interaction coulombienne.

C'est dans ce dernier cas que les boîtes quantiques se situent en général, puisque les dimensions typiques des boîtes quantiques auto-organisées en InAs se situent entre 1 et 10 nm, soit tout au plus comparables au rayon de Bohr de l'exciton. Dans le cas des excitons dans les boîtes quantiques, l'essentiel de l'énergie de liaison n'est donc en général pas dû à l'interaction coulombienne mais au confinement dans la structure. C'est pourquoi, dans ce cas, on parle parfois de quasi-exciton, pour lequel les charges peuvent être considérées indépendantes et un décalage en énergie dû à l'interaction coulombienne est ajouté comme une correction de l'ordre de 20 meV alors que l'énergie d'ionisation de l'électron ou du trou sont de l'ordre de 100 meV [VASANELLI 2002].

## 1.3 Mécanismes de relaxation, modèle du système à deux niveaux

### 1.3.1 Mécanismes de relaxation

Considérons une boîte quantique unique en InAs, en présence d'une couche de mouillage, insérée dans du GaAs massif. Pour créer un ou des excitons dans la boîte quantique, de nombreuses charges sont en général créées dans l'environnement proche, une ou plusieurs paires électron-trou étant finalement piégées dans la boîte. Ce processus implique l'existence de mécanismes de relaxation permettant à la paire électron-trou de perdre de l'énergie [FERREIRA & BASTARD s.d.]. De plus, l'énergie de la transition fondamentale est affectée par l'ensemble de ces mécanismes qui perturbent l'environnement électrostatique et mécanique de la boîte, menant à une dégradation de la cohérence de la transition  $S_e - S_h$ .

#### Relaxation de la population vers $S_e - S_h$

La méthode la plus courante pour injecter des charges dans une boîte quantique est d'exciter à haute énergie, en créant des paires électron-trou dans la couche de mouillage ou dans la barrière (c'est-à-dire dans le GaAs massif). L'excitation peut se faire optiquement ou électriquement, par injection directe de charges dans l'échantillon. On parle alors d'excitation non-résonnante.

Lorsque l'on excite le système de manière non-résonnante, on crée de nombreuses paires électron-trou dans le continuum d'états du matériau massif ou de la couche de mouillage. Des mécanismes permettent ensuite aux paires électron-trou de perdre de l'énergie :

- l'effet Auger, pour lequel une paire électron-trou va transférer son énergie et son impulsion à une autre paire,
- l'assistance par l'émission d'un ou de plusieurs phonons, permettant également de diminuer l'énergie et l'impulsion d'une paire électron-trou.

Ces deux processus permettent la capture dans la boîte quantique de quelques unes des paires électron-trou créées dans le continuum du matériau massif et de la couche de mouillage [MAGNUSDOTTIR, BISCHOFF *et al.* 2003 ; MAGNUSDOTTIR, USKOV *et al.* 2002 ; USKOV *et al.* 1998] ; leur efficacité relative dépend de la puissance d'excitation et de la géométrie des boîtes.

Une fois capturé dans la boîte, la relaxation de l'énergie de l'exciton entre les niveaux discrets est moins évidente à expliquer car l'effet Auger est un processus à plusieurs charges qui n'est pas efficace si les niveaux ne contiennent qu'un seul exciton. Lorsqu'il y a plusieurs charges, il est toutefois très efficace avec des temps de relaxation  $< 1$  ps typiquement pour un électron [FERREIRA & BASTARD 1999a ; FERREIRA & BASTARD 1999b]. Pour la relaxation assistée par les phonons, seul le mode

longitudinal de phonons optiques (phonons LO) est susceptible d'être efficace, mais leur énergie est bien définie (typiquement 36 meV dans le GaAs). Pour qu'ils ouvrent une voie de relaxation, il faut donc un accord entre l'énergie des phonons LO et les écarts d'énergie entre les niveaux discrets de la boîte quantique, ce qui est très peu probable [BENISTY *et al.* 1991 ; BOCKELMANN & BASTARD 1990]. La relaxation assistée par les phonons est donc a priori très inefficace. Toutefois, il existe un couplage fort phonon-électron [HAMEAU *et al.* 1999] et phonon-trou dans les boîtes quantiques, ce qui donne lieu à l'apparition de modes phonon-excitons appelés *polarons excitoniques* qui ouvrent une voie de relaxation entre les états discrets. Par exemple, un électron dans l'état  $P_e$  sera couplé avec un phonon LO, celui-ci pouvant se désintégrer en deux phonons moins énergétiques [VERZELEN *et al.* 2002, 2000] en laissant l'électron dans l'état  $S_e$ ; le processus symétrique existe pour les trous. Comme la désintégration des phonons LO est très efficace, cette voie de relaxation l'est également, avec un temps typique  $< 10$  ps entre  $P_e - P_h$  et  $S_e - S_h$ .

Une manière plus délicate d'injecter des charges dans les boîtes est de les exciter optiquement en utilisant des photons qui ont exactement l'énergie qui sépare, par exemple,  $S_e$  et  $S_h$  ou bien  $P_e$  et  $P_h$ , les transitions entre ces niveaux étant couplées à la lumière. On parle alors d'excitation résonnante. Les excitons sont créés directement dans la boîte quantique, qui est essentiellement la seule structure qui absorbe à ces énergies.

### **Relaxation de la population et de la cohérence pour la transition $S_e - S_h$**

Dans cette thèse, nous allons nous intéresser aux propriétés de cohérence des photons émis par la boîte quantique, et en particulier par la transition  $S_e - S_h$ .

Si la relaxation via les polarons évoquée au paragraphe précédent est susceptible de provoquer des recombinaisons non-radiatives, l'essentiel du couplage aux phonons disparaît aux températures cryogéniques auxquelles nous travaillons ( $T < 20$  K), que ce soit pour la relaxation de la population ou la relaxation de la cohérence [BORRI *et al.* 2001 ; FAVERO *et al.* 2003 ; VERZELEN *et al.* 2002].

La seconde voie de relaxation est le couplage au champ électromagnétique qui permet la recombinaison radiative de l'exciton par émission spontanée, caractérisée par un temps de vie  $T_1$ . Cette relaxation de l'énergie induit nécessairement une relaxation de la cohérence. Lorsque la relaxation de la cohérence n'est induite que par la voie radiative, le système est dit à la limite radiative, ce qui permet d'obtenir les meilleures propriétés de cohérence des photons émis par cette transition.

La dernière voie de relaxation n'affecte que la cohérence. Elle est liée à l'interaction avec l'environnement électrostatique fluctuant. Les impuretés dans l'échantillon et les défauts, en particulier aux interfaces entre l'InAs et le GaAs, constituent des pièges

qui peuvent accueillir des charges. Le piégeage et le dépiégeage des charges\* vont influencer les niveaux d'énergie de la boîte quantique par effet Stark. En fonction de la dynamique de piégeage, de la nature du piège, de sa distance à la boîte quantique, les fluctuations résultantes peuvent être très variables en amplitude et en fréquence. On distingue en particulier deux régimes en considérant les fluctuations d'énergie des niveaux de la boîte quantique [BERTHELOT *et al.* 2006 ; BERTHELOT 2008] :

- des fluctuations lentes et de grande amplitude, telles que  $\Delta E \tau_c \gg \hbar$  (où  $\Delta E$  est l'amplitude des fluctuations et  $\tau_c$  le temps caractéristique), où la raie va se déplacer en fonction de l'énergie des niveaux influencée par les fluctuations de l'environnement électrostatique, résultant en une raie gaussienne ;
- des fluctuations rapides et de faible amplitude, telles que  $\Delta E \tau_c \ll \hbar$ , où les variations d'énergie instantanée sont vues comme un mouvement brownien sur la phase de la cohérence de la transition  $S_e - S_h$ , résultant en une raie lorentzienne élargie.

Ce dernier cas aboutit à une relaxation de la cohérence en exponentielle décroissante, caractérisée par un temps  $T_2^*$  généralement appelé *temps de déphasage pur*.

Dans notre cas, nous allons négliger tous les processus hormis la recombinaison radiative et le régime de fluctuations rapides de l'environnement. L'enjeu pour se rapprocher de la limite radiative sera donc de disposer d'un système où  $T_2^*$  est le plus long possible, en particulier plus long que le temps de vie radiatif  $T_1$ .

### 1.3.2 Excitation résonnante et modèle du système à deux niveaux

On peut déduire des considérations du paragraphe précédent que les processus dégradant la cohérence de la transition  $S_e - S_h$  peuvent en grande partie être supprimés en excitant directement à l'énergie de la transition, de manière résonnante. Cela évite l'absorption par le continuum d'états de la barrière ou de la couche de mouillage, qui créent de multiples charges, sources de perturbations électrostatiques et donc de diffusion spectrale. Cette idée est appuyée par les mesures de [KAMMERER 2002] (cf. figure 1.7), où la raie de photoluminescence est d'autant plus fine que l'énergie d'excitation est proche de l'énergie de l'exciton, signe d'une meilleure cohérence.

La recombinaison d'un exciton  $S$  est la seule raie bien isolée spectralement sur le spectre d'absorption de la figure 1.6. Lorsqu'un laser est accordé à l'énergie de cet exciton, la formation d'une paire électron-trou n'a lieu que dans la boîte quantique, et le principe de Pauli n'autorise au plus que deux excitons  $S$  dans la boîte. À la manière de ce qui est schématisé sur la figure 1.8, lorsqu'on excite la boîte de manière résonnante avec  $S_e - S_h$ , on peut considérer cette transition comme celle entre deux états de la boîte quantique : un état fondamental noté  $|g\rangle$  où la boîte est vide et ne

---

\* Ces processus de piégeage et de dépiégeage sont souvent, eux, liés aux phonons, même à basse température.

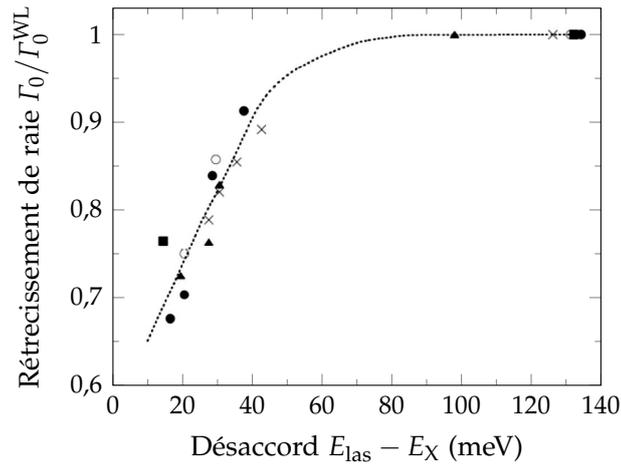


FIGURE 1.7 — Rétrécissement de la raie de photoluminescence de la transition  $S_e - S_h$  en fonction de l'énergie d'excitation (reproduite de [KAMMERER 2002, figure 5.4.4, p. 133]).  $\Gamma_0$  et  $\Gamma_0^{\text{WL}}$  sont respectivement les largeurs à mi-hauteur de la raie à l'énergie d'excitation et à l'énergie de luminescence de la couche de mouillage (limite à droite).  $E_{\text{las}}$  et  $E_\chi$  sont respectivement les énergies du laser d'excitation et de l'exciton  $S$ . Les différents marqueurs correspondent à différentes boîtes quantiques.

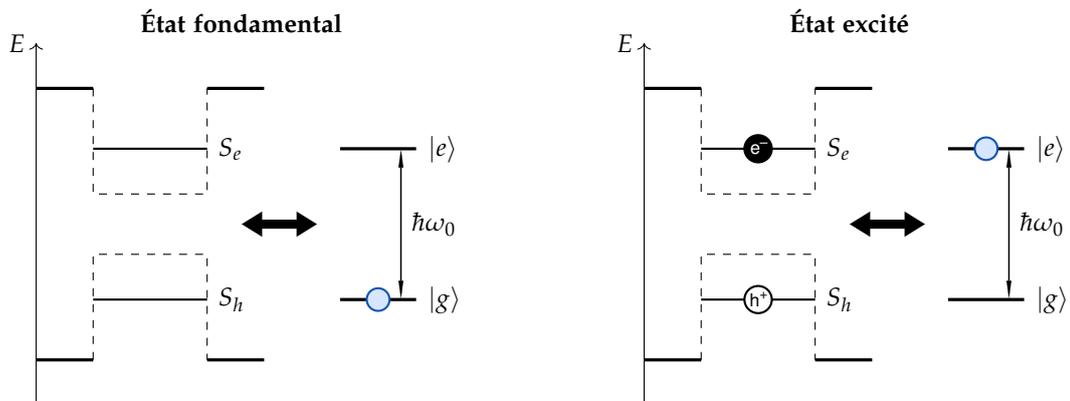


FIGURE 1.8 — Modèle du système à deux niveaux.

contient pas d'exciton, et un état excité noté  $|e\rangle$  où la boîte contient un exciton, avec un électron sur le niveau  $S_e$  et un trou sur le niveau  $S_h$ .

Comme nous le verrons au chapitre 2, l'excitation résonnante n'est pas facile à réaliser expérimentalement. Notre montage permet toutefois de la réaliser et nous nous placerons dans ce cadre où les propriétés de cohérence sont meilleures et où l'on peut utiliser la physique abondamment documentée du système à deux niveaux.

## 1.4 Excitation résonnante : une approche théorique

Nous allons à présent aborder l'excitation résonnante de manière théorique, grâce à une approche semi-classique, dans laquelle un champ classique interagit avec un système à deux niveaux. Nous nous intéresserons à l'évolution de l'amplitude et de la cohérence du champ émis par une boîte quantique unique sous excitation résonnante en fonction de la puissance d'excitation.

### 1.4.1 Modèle semi-classique

Le système étudié dans cette section est le système à deux niveaux constitué par la boîte quantique couplé au champ électromagnétique. Le raisonnement présenté ci-dessous suit globalement le formalisme et la méthode présentés dans [BOYD 2008, cf. chapitre 6, p. 277]. Notez cependant que le tilde  $\sim$  est utilisé ici pour désigner les grandeurs dans le référentiel tournant du laser d'excitation. Pour éviter le conflit de notations avec le livre de Boyd, nous noterons le champ oscillant simplement  $E(t)$  et l'amplitude du champ  $\mathcal{E}$ .

Nous utiliserons le formalisme de la matrice densité, dans lequel l'état du système est décrit par sa matrice densité  $\rho$  :

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{bmatrix} \quad (1.4.1)$$

où  $\rho_{eg} = \rho_{ge}^*$  sont appelées cohérences.  $\rho_{gg}$  et  $\rho_{ee}$  sont les populations des niveaux  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$ . On a  $\rho_{gg} + \rho_{ee} = 1$ . Notez que la matrice densité et ses coefficients dépendent du temps, mais que nous n'écrirons en général pas cette dépendance temporelle pour alléger les notations.

On rappelle également que l'on peut écrire  $\rho$  sous la forme :

$$\rho = \rho_{ee}|e\rangle\langle e| + \rho_{eg}|e\rangle\langle g| + \rho_{ge}|g\rangle\langle e| + \rho_{gg}|g\rangle\langle g| \quad (1.4.2)$$

Dans un premier temps, nous ne considérons pas de phénomènes de relaxation, qui seront introduits phénoménologiquement à la fin de ce paragraphe. Nous définissons l'hamiltonien  $H$  décrivant l'évolution du champ électromagnétique couplé au dipôle induit par le laser d'excitation :

$$H = H_0 + V(t) \quad (1.4.3)$$

où  $H_0$  est le hamiltonien du système à deux niveaux et  $V(t)$  est le hamiltonien d'interaction entre le système et le champ électromagnétique.

Pour le système à deux niveaux, on appelle  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$  les deux états, d'énergies  $\hbar\omega_g$  et  $\hbar\omega_e$ . On pose  $\omega_0 = \omega_e - \omega_g$ . L'état  $|e\rangle$ , que nous appellerons état excité, se situe

donc  $\hbar\omega_0$  au-dessus de  $|g\rangle$ , que nous appellerons état fondamental. L'hamiltonien  $H_0$  s'écrit :

$$H_0 = \begin{bmatrix} \hbar\omega_e & 0 \\ 0 & \hbar\omega_g \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.4.4)$$

Pour le terme d'interaction, nous travaillons dans l'approximation dipolaire :

$$V(t) = -\vec{\mu} \cdot \vec{E}_L(t) \quad (1.4.5)$$

où  $\vec{\mu}$  est l'opérateur dipolaire et  $\vec{E}_L(t)$  le champ électrique du laser d'excitation qui agit comme un terme de forçage oscillant à  $\omega_L$ .

Les termes diagonaux de  $V$  sont nuls pour des raisons de parité, ainsi on pose  $\mu_{eg}$  tel que :

$$V(t) = \begin{bmatrix} 0 & -\vec{\mu}_{eg} \cdot \vec{E}_L(t) \\ -\vec{\mu}_{eg}^* \cdot \vec{E}_L^*(t) & 0 \end{bmatrix} \quad (1.4.6)$$

Les termes non-diagonaux de  $V(t)$  seront notés  $V_{eg}(t)$  et  $V_{ge}(t)$ .

L'équation du mouvement de la matrice densité  $\rho$  s'écrit :

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{-i}{\hbar} [H, \rho] \quad (1.4.7)$$

Les équations d'évolution des coefficients de la matrice densité  $\rho$  peuvent alors s'écrire :

$$\frac{d\rho_{eg}}{dt} = -i\omega_0\rho_{eg} + \frac{i}{\hbar} V_{eg}(t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) \quad (1.4.8a)$$

$$\frac{d\rho_{ee}}{dt} = \frac{i}{\hbar} (V_{eg}(t)\rho_{ge} - \rho_{eg}V_{ge}(t)) \quad (1.4.8b)$$

$$\frac{d\rho_{gg}}{dt} = \frac{i}{\hbar} (V_{ge}(t)\rho_{eg} - \rho_{ge}V_{eg}(t)) \quad (1.4.8c)$$

Il est possible de prendre en compte les processus de relaxation en ajoutant des temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$  de manière phénoménologique et de ramener les équations (1.4.8b) et (1.4.8c) à une équation unique sur l'inversion de population  $(\rho_{ee} - \rho_{gg})$  (sachant que  $\rho_{gg} + \rho_{ee} = 1$ ) :

$$\frac{d\rho_{eg}}{dt} = - \left[ i\omega_0 + \frac{1}{T_2} \right] \rho_{eg} + \frac{i}{\hbar} V_{eg}(t)(\rho_{ee} - \rho_{gg}) \quad (1.4.9a)$$

$$\frac{d}{dt}(\rho_{ee} - \rho_{gg}) = - \frac{(\rho_{ee} - \rho_{gg}) + 1}{T_1} - \frac{2i}{\hbar} (V_{eg}(t)\rho_{ge} - \rho_{eg}V_{ge}(t)) \quad (1.4.9b)$$

### 1.4.2 Signification de $T_1$ et $T_2$ – limite radiative

En considérant l'équation (1.4.9b) sans champ excitateur ( $V_{eg} = 0$ ), l'inversion de population a la dépendance temporelle suivante :

$$(\rho_{ee}(t) - \rho_{gg}(t)) = [(\rho_{ee}(0) - \rho_{gg}(0)) + 1] e^{-t/T_1} - 1 \quad (1.4.10)$$

L'inversion de population tend alors naturellement vers  $-1$ , ce qui signifie qu'aux temps longs, la population est entièrement dans l'état fondamental  $|g\rangle$ . Cette évolution a lieu avec un temps caractéristique  $T_1$ , appelé *temps de relaxation de la population* ou plus couramment *temps de vie* de l'état excité.

De la même manière avec l'équation (1.4.9a) et  $V_{eg} = 0$  on obtient :

$$\rho_{eg}(t) = \rho_{eg}(0) e^{-(i\omega_0 + \frac{1}{T_2})t} \quad (1.4.11)$$

Or la valeur moyenne du moment dipolaire  $\mu$  induit par la transition  $|e\rangle - |g\rangle$  s'écrit :

$$\begin{aligned} \langle \mu \rangle &= \text{Tr} [\mu \rho] \\ &= \mu_{ge} \rho_{eg}(t) + \mu_{eg} \rho_{ge}(t) \\ &= \left[ \mu_{ge} \rho_{eg}(0) e^{-i\omega_0 t} + \text{c.c.} \right] e^{-t/T_2} \end{aligned} \quad (1.4.12)$$

Ainsi le moment dipolaire oscille naturellement à  $\omega_0$  et décroît vers 0 avec un temps caractéristique  $T_2$  appelé *temps de relaxation de la cohérence*, ou plus couramment *temps de cohérence* — bien que ce nom prête à confusion : le temps de cohérence des photons émis peut être très différent de  $T_2$ .

$T_1$  et  $T_2$  sont liés par la relation suivante\* :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (1.4.13)$$

où  $T_2^*$  est appelé *temps de déphasage pur*, et décrit le temps caractéristique de l'ensemble des processus causant une perte de cohérence sans perte de population.

Lorsque  $T_2^*$  devient très grand devant  $T_1$ , on peut négliger l'influence du déphasage pur. Cette limite est appelée *limite radiative* puisque dans ce cas seul le couplage radiatif limite la cohérence du système. On a alors :

$$T_2 = 2T_1 \quad (1.4.14)$$

et l'on peut caractériser  $T_1$  et  $T_2$  en utilisant le taux d'émission spontanée  $\Gamma$  :

$$\Gamma = \frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} \quad (1.4.15)$$

---

\* [BOYD 2008, p. 283, éq. (6.2.21a)] La raison pour laquelle une telle dépendance entre  $T_2$  et  $T_1$  existe est bien expliquée aux p. 156–157. La décroissance de la population implique également la décroissance de la cohérence, c'est-à-dire de l'amplitude du moment dipolaire. De plus, le facteur 2 est lié à la nature des coefficients de la matrice densité, la cohérence étant proportionnelle au champ électrique et la population à l'intensité.

### 1.4.3 Référentiel tournant du laser et solutions en régime stationnaire

Dans l'hypothèse d'une excitation par un laser continu monochromatique de pulsation  $\omega_L$ , le champ d'excitation s'écrit :

$$E_L(t) = \mathcal{E} e^{-i\omega_L t} + \mathcal{E}^* e^{i\omega_L t} \quad (1.4.16)$$

Les coefficients de l'hamiltonien d'interaction  $V(t)$  donné par (1.4.6) prennent la forme :

$$V_{eg}(t) = -\mu_{eg} \left( \mathcal{E} e^{-i\omega_L t} + \mathcal{E}^* e^{i\omega_L t} \right) \quad (1.4.17)$$

Or l'équation (1.4.11) montre que  $\rho_{eg}$  évolue naturellement en  $e^{-i\omega_0 t}$ . D'après l'équation (1.4.9a), dans l'hypothèse d'un pompage à une énergie proche de la résonance, la composante du champ du laser tournant en  $e^{-i\omega_L t}$  sera donc bien plus efficace que la composante en  $e^{i\omega_L t}$ . L'approximation séculaire consiste à négliger cette dernière composante, ainsi on obtient :

$$\begin{aligned} V_{eg}(t) &= -\mu_{eg} \mathcal{E} e^{-i\omega_L t} \\ V_{ge}(t) &= -\mu_{eg}^* \mathcal{E}^* e^{i\omega_L t} \end{aligned} \quad (1.4.18)$$

De plus, afin de supprimer la dépendance temporelle des coefficients dans les équations d'évolution (1.4.9a) et (1.4.9b), on définit la matrice densité  $\tilde{\rho}$  dans le référentiel tournant du laser :

$$\tilde{\rho} = \begin{bmatrix} \tilde{\rho}_{gg} & \tilde{\rho}_{ge} \\ \tilde{\rho}_{eg} & \tilde{\rho}_{ee} \end{bmatrix} \quad (1.4.19)$$

dont les coefficients sont tels que :

$$\begin{aligned} \rho_{gg}(t) &= \tilde{\rho}_{gg}(t) \\ \rho_{ee}(t) &= \tilde{\rho}_{ee}(t) \\ \rho_{eg}(t) &= \tilde{\rho}_{eg}(t) e^{-i\omega_L t} \\ \rho_{ge}(t) &= \tilde{\rho}_{ge}(t) e^{i\omega_L t} \end{aligned} \quad (1.4.20)$$

Dans le référentiel tournant du laser, les équations d'évolution (1.4.9a) et (1.4.9b) s'écrivent alors\* :

$$\frac{d\tilde{\rho}_{eg}}{dt} = \left[ i\Delta - \frac{1}{T_2} \right] \tilde{\rho}_{eg} - \frac{i}{\hbar} \mu_{eg} \mathcal{E} (\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) \quad (1.4.21a)$$

$$\frac{d}{dt} (\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}) = -\frac{1 + (\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})}{T_1} + \frac{2i}{\hbar} (\mu_{eg} \mathcal{E} \tilde{\rho}_{ge} - \mu_{ge} \mathcal{E}^* \tilde{\rho}_{eg}) \quad (1.4.21b)$$

\* Ces équations sont équivalentes aux équations de Bloch optiques. Pour obtenir les équations de Bloch optiques, il faut utiliser les quadratures du champ  $u$  et  $v$  telles que  $\tilde{\rho}_{eg} = \frac{1}{2}(u - iv)$ , en identifiant les parties réelles et imaginaires de l'équation (1.4.21a), et l'inversion de population  $w = \tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg}$ .

où  $\Delta = \omega_L - \omega_0$  est le désaccord entre la pulsation du laser et la pulsation propre du système à deux niveaux.

En régime stationnaire, les dérivées temporelles dans les membres de gauche sont nulles, et on obtient :

$$(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})^{(st)} = \frac{-(1 + \Delta^2 T_2^2)}{1 + \Delta^2 T_2^2 + \frac{4|\mu_{eg}|^2 |\mathcal{E}|^2}{\hbar^2} T_1 T_2} \quad (1.4.22)$$

$$\tilde{\rho}_{eg}^{(st)} = \frac{\mu_{eg} \mathcal{E}}{\hbar} \cdot \frac{(\tilde{\rho}_{ee} - \tilde{\rho}_{gg})^{(st)}}{i + \Delta \cdot T_2} \quad (1.4.23)$$

#### 1.4.4 Lien entre le champ rayonné et le dipôle émetteur

Nous suivons à présent un raisonnement exposé dans [COHEN-TANNOUJDI *et al.* 1988, cf. § V-D, p. 363].

Le champ rayonné par le dipôle, pris à l'emplacement  $\vec{r}_D$  du détecteur à l'instant  $t$ , est proportionnel au moment du dipôle émetteur  $\mu(t)$  lorsque l'énergie d'excitation est proche de la résonance. Ce champ s'écrit :

$$E(\vec{r}_D, t) \propto \mu \left( t - \frac{r_D}{c} \right) \quad (1.4.24)$$

Notez que ces opérateurs évoluent en fonction du temps et l'expression précédente est donc écrite en représentation de Heisenberg. Pour simplifier les expressions par la suite, nous resterons systématiquement à la position du détecteur, qui ne sera plus précisée, et n'écrirons plus le décalage temporel avec la position du détecteur  $t - r_D/c$ .

On peut séparer le champ  $E(t)$  en deux composantes  $E^{(+)}(t)$  et  $E^{(-)}(t)$  respectivement de fréquences positives et négatives :

$$E(t) = E^{(+)}(t) + E^{(-)}(t) \quad (1.4.25)$$

Nous pouvons également séparer l'opérateur dipolaire  $\mu(t)$  en deux composantes :

$$\mu(t) = \mu_{eg} S_-(t) + \mu_{eg}^* S_+(t) \quad (1.4.26)$$

où les opérateurs  $S_-(t)$  et  $S_+(t)$  correspondent respectivement aux opérateurs annihilation  $|g\rangle\langle e|$  et création  $|e\rangle\langle g|$  en représentation de Schrödinger.

D'après l'équation (1.4.11),  $\langle \mu_{eg} S_-(t) \rangle = \mu_{eg} \rho_{eg}(t)$  tourne naturellement en  $e^{-i\omega_0 t}$  et  $\langle \mu_{eg}^* S_+(t) \rangle = \mu_{eg}^* \rho_{ge}(t)$  tourne en  $e^{i\omega_0 t}$ . Ainsi,  $S_-(t)$  correspond à la composante du moment dipolaire oscillant avec une fréquence positive tandis que  $S_+(t)$  est la composante oscillant avec une fréquence négative. D'après les expressions (1.4.24) et (1.4.25), on peut donc écrire :

$$E^{(\pm)}(t) \propto S_{\mp}(t) \quad (1.4.27)$$

### 1.4.5 Intensité et largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation

D'après l'expression (1.4.27), l'intensité mesurée par le détecteur s'écrit :

$$\langle I(t) \rangle = \langle E^{(-)} E^{(+)} \rangle \propto \langle S_+ S_- \rangle \quad (1.4.28)$$

Or  $S_+ S_- = |e\rangle\langle e|$ , l'intensité moyenne émise par la boîte est donc proportionnelle à la population de l'état excité  $|e\rangle$ . En régime stationnaire, en utilisant le changement de référentiel défini par les relations (1.4.20), le résultat (1.4.22) et la conservation de la population  $\rho_{ee} + \rho_{gg} = 1$ , on a donc :

$$\begin{aligned} \langle I \rangle^{(st)} \propto \rho_{ee}^{(st)} = \tilde{\rho}_{ee}^{(st)} &= \frac{(\rho_{ee} - \rho_{gg})^{(st)} + 1}{2} \\ &= \frac{\frac{1}{2} \Omega^2 T_1 T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2 + \Omega^2 T_1 T_2} \end{aligned} \quad (1.4.29)$$

où  $\Omega$  est la pulsation de Rabi à la résonance :

$$\Omega = \frac{2|\mu_{eg}| |\mathcal{E}|}{\hbar} \quad (1.4.30)$$

On remarque que  $\Omega$  est proportionnel au module du champ du laser, ce qui signifie que  $\Omega^2$  est proportionnel à l'intensité d'excitation.

L'expression (1.4.29) ci-dessus donnera donc l'intensité totale émise en fonction des temps  $T_1$  et  $T_2$ , du désaccord  $\Delta$  et de la puissance d'excitation proportionnelle à  $\Omega^2$ . On peut la réécrire sous la forme :

$$\begin{aligned} \langle I \rangle^{(st)} &\propto \frac{1}{2} \cdot \frac{1}{1 + \frac{1 + \Delta^2 T_2^2}{\Omega^2 T_1 T_2}} \\ &= \frac{1}{2} \cdot \frac{s}{1 + s} \end{aligned} \quad (1.4.31)$$

où l'on définit le *paramètre de saturation*  $s$  :

$$s = \frac{\Omega^2 T_1 T_2}{1 + \Delta^2 T_2^2} \quad (1.4.32)$$

À un désaccord  $\Delta$  donné, la puissance d'excitation correspondant à  $s = 1$  est caractéristique et appelée *puissance de saturation* notée  $p_{\text{sat}}$ . Nous verrons que cette puissance d'excitation est très importante pour séparer différents régimes d'excitation du système à deux niveaux. Le paramètre de saturation  $s$  est proportionnel à la puissance d'excitation et correspond au rapport  $\frac{p}{p_{\text{sat}}}$  : lorsque  $s$  vaut 1, l'excitation est donc à la puissance de saturation du système à deux niveaux. Étant donné que nous travaillerons en général à  $\Delta = 0$ , nous utiliserons principalement le paramètre de saturation à désaccord nul  $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$ .

Sur la figure 1.9, l'intensité émise par le système à deux niveaux est représentée en fonction de  $\Delta \cdot T_2$ , c'est-à-dire du désaccord, pour différentes valeurs de  $s_0$ . Ces courbes théoriques sont donc des spectres décrivant les variations de l'intensité émise en fonction du désaccord du laser d'excitation avec l'énergie de la transition. On remarquera que les puissances choisies augmentent exponentiellement et l'effet de saturation du maximum d'émission est clairement observable, la population du niveau excité tendant vers  $1/2$ .

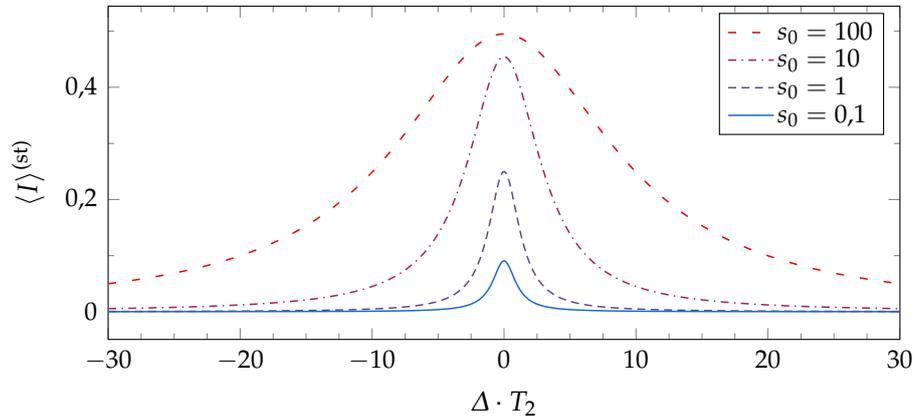
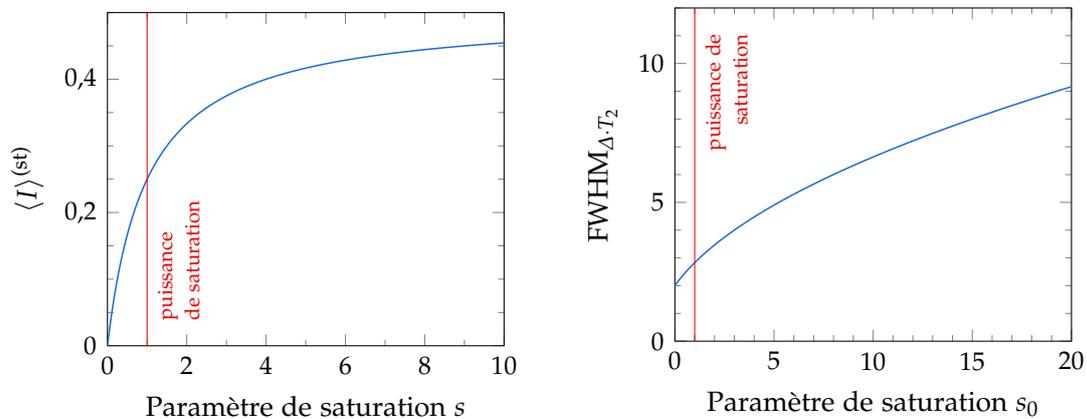


FIGURE 1.9 — Intensité de la photoluminescence du système à deux niveaux en fonction du désaccord  $\Delta \cdot T_2$ , calculés avec l'expression (1.4.31) pour différentes valeurs du paramètre de saturation  $s_0$ .



(a) Courbe de saturation de l'intensité émise par la boîte sous excitation résonnante.

(b) Évolution de la largeur à mi-hauteur du spectre en fonction de la puissance d'excitation.

FIGURE 1.10 — Comportement de l'intensité émise par le système à deux niveaux excité à résonance et largeur à mi-hauteur de son spectre d'excitation.

Cet effet de saturation est clairement visible sur la figure 1.10a, où l'on a tracé l'intensité émise à désaccord nul, en fonction de la puissance d'excitation. La puissance de saturation, pour laquelle  $s = 1$  (ou  $s_0 = 1$ ), est représentée par une ligne verticale.

Elle sépare deux régimes de fonctionnement : un régime linéaire pour  $s \ll 1$  où la population du niveau excité est proportionnelle à la puissance d'excitation, et un régime saturé pour  $s \gg 1$ , où la population reste constante à  $1/2$ , quelle que soit la puissance d'excitation.

La largeur de raie représentée sur la figure 1.10b s'écrit :

$$\text{FWHM}_{\Delta \cdot T_2} = 2\sqrt{1 + s_0} \quad (1.4.33)$$

où FWHM correspond à *Full Width Half-Maximum*, soit la largeur à mi-hauteur, ici exprimée en fonction de  $\Delta \cdot T_2$ .

La largeur de raie augmente donc en racine carrée de la puissance, et la limite de  $\text{FWHM}_{\Delta \cdot T_2}$  aux faibles puissances est 2. Si on se ramène à la largeur en fréquence, elle est donc égale à  $\frac{1}{\pi T_2}$ . On pourra donc utiliser cette valeur pour estimer  $T_2$ .

### 1.4.6 Diffusions élastique et inélastique

L'intensité lumineuse émise par le système à deux niveaux est en fait constituée de deux composantes correspondant à deux processus distincts.

*Principe général* : On peut réécrire les opérateurs dipolaires  $S_{\pm}$  définis au paragraphe 1.4.4 sous la forme :

$$S_{\pm}(t) = \langle S_{\pm}(t) \rangle + \delta S_{\pm}(t) \quad (1.4.34)$$

où  $\langle S_{\pm}(t) \rangle$  est la valeur moyenne de  $S_{\pm}$  et  $\delta S_{\pm}(t) = S_{\pm}(t) - \langle S_{\pm}(t) \rangle$  l'écart à la valeur moyenne, ce qui signifie que :

$$\langle \delta S_{\pm}(t) \rangle = 0 \quad (1.4.35)$$

On sépare ainsi le dipôle en deux composantes. La première correspond au dipôle moyen  $\langle S_{\pm}(t) \rangle$  qui est constant dans le référentiel tournant à  $\omega_L$ . Ce dipôle est donc totalement asservi au champ exciteur et oscille avec une phase déterminée par le laser d'excitation. Le rayonnement émis par cette composante peut donc interférer avec l'onde incidente, c'est pourquoi on parle de *diffusion cohérente* ou *élastique* pour décrire l'origine du rayonnement dû à  $\langle S_{\pm}(t) \rangle$ . La seconde composante est reliée aux fluctuations  $\delta S_{\pm}(t)$  de  $S_{\pm}$  par rapport au dipôle moyen et rayonne un champ dont la phase n'est pas bien définie par rapport au laser d'excitation puisqu'il correspond précisément aux fluctuations par rapport à cette phase. On parle alors de *diffusion incohérente* ou *inélastique*.

*Régime stationnaire et dépendance en puissance d'excitation* : Nous nous plaçons à présent en régime stationnaire, ce qui ne sera pas systématiquement précisé. Tout d'abord, l'intensité émise s'écrit :

$$\langle I \rangle \propto \langle S_+ S_- \rangle = \underbrace{\langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle}_{\text{diffusion élastique}} + \underbrace{\langle \delta S_+ \delta S_- \rangle}_{\text{diffusion inélastique}} \quad (1.4.36)$$

Si l'on appelle ces deux composantes  $\langle I_{\text{él}} \rangle$  et  $\langle I_{\text{inél}} \rangle$ , on peut les calculer en utilisant les relations (1.4.20), (1.4.23) et (1.4.29) :

$$\begin{aligned} \langle I_{\text{él}} \rangle &\propto \langle S_+ \rangle \langle S_- \rangle = |\langle S_+ \rangle|^2 = |\tilde{\rho}_{eg}^{(\text{st})}|^2 \\ &= \frac{1}{2} \cdot \frac{T_2}{2T_1} \cdot \frac{s}{(1+s)^2} \end{aligned} \quad (1.4.37)$$

$$\begin{aligned} \langle I_{\text{inél}} \rangle &\propto \langle S_+ S_- \rangle - |\langle S_+ \rangle|^2 = \tilde{\rho}_{ee}^{(\text{st})} - |\tilde{\rho}_{eg}^{(\text{st})}|^2 \\ &= \frac{1}{2} \cdot \frac{(1 - \frac{T_2}{2T_1})s + s^2}{(1+s)^2} \end{aligned} \quad (1.4.38)$$

Ces deux quantités sont représentées en fonction de  $s$  sur le graphe supérieur de la figure 1.11, ainsi que l'intensité totale — qui est la somme des deux. À basse puissance, c'est la diffusion élastique qui est prépondérante : elle évolue linéairement avec la puissance alors que la diffusion inélastique évolue quadratiquement. Au passage de la saturation, le comportement de la diffusion élastique s'inverse et commence à diminuer jusqu'à disparaître à la limite des hautes puissances. Ceci est lié au fait que lorsque l'on augmente la puissance, l'inversion de population tend vers 0, ce qui signifie que les deux niveaux sont également peuplés et que le dipôle moyen induit est neutralisé, ne laissant que la diffusion inélastique sur les fluctuations de ce dipôle moyen.

Ainsi le graphe inférieur de la figure 1.11 représente la proportion d'intensité diffusée élastiquement en fonction du paramètre de saturation  $s$ . Elle est estimée par le rapport de l'intensité diffusée élastiquement (expression (1.4.37)) sur l'intensité totale émise (expression (1.4.31)), qui s'exprime :

$$\frac{\langle I_{\text{él}} \rangle}{\langle I \rangle} = \frac{T_2}{2T_1} \cdot \frac{1}{1+s} \quad (1.4.39)$$

On remarquera en particulier que la limite à basse puissance ( $s \rightarrow 0$ ) de ce rapport est  $\frac{T_2}{2T_1}$ . La figure 1.12 montre l'allure de  $\frac{\langle I_{\text{él}} \rangle}{\langle I \rangle}$  pour différentes valeurs de  $\frac{T_2}{2T_1}$ . Cela signifie qu'aussi basse que puisse être la puissance d'excitation, les processus de déphasage pur continueront de jouer un rôle car ils sont a priori indépendants de la puissance d'excitation. En revanche, le déphasage lié au déclin en population sera éliminé puisque celle-ci tend vers 0 dans la limite de basse puissance.

Ce régime de basse puissance est appelé régime de *diffusion Rayleigh résonnante*. La dépendance en puissance est alors linéaire et la diffusion élastique est prépondérante dans le cas d'un émetteur pour lequel  $\frac{T_2}{2T_1} \lesssim 1$ .

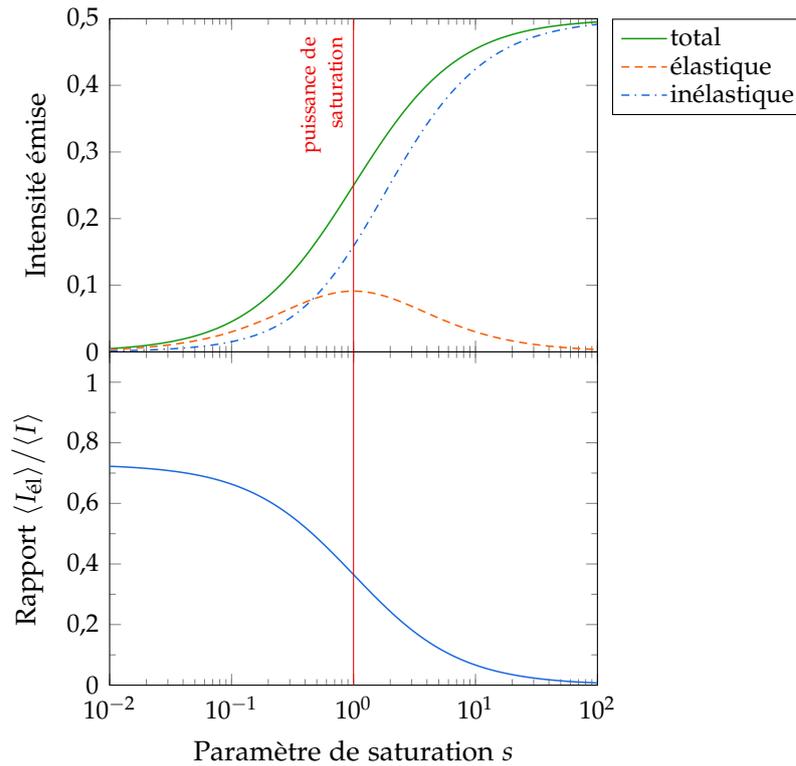


FIGURE 1.11 — *En haut* : calcul des intensités totale, diffusée élastiquement et inélastiquement, en fonction de la puissance d'excitation représentée ici par le paramètre de saturation. L'unité est la population de l'état excité. *En bas* : rapport entre l'intensité diffusée élastiquement et l'intensité totale émise par le système à deux niveaux. Pour ces deux graphes, les temps  $T_1$  et  $T_2$  utilisés correspondent aux temps de la boîte QDIII-bis établis au chapitre 3, c'est-à-dire  $T_1 = 0,37$  ns et  $T_2 = 0,54$  ns, soit  $\frac{T_2}{2T_1} = 73\%$ .

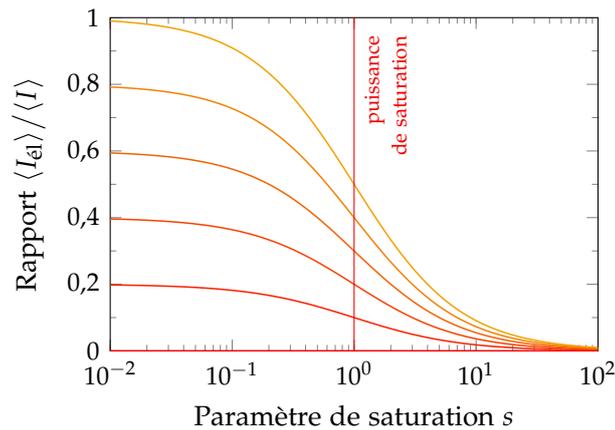


FIGURE 1.12 — Évolution du rapport entre l'intensité diffusée élastiquement et l'intensité totale, en modifiant le rapport  $\frac{T_2}{2T_1}$  qui, de bas en haut, va de 0 à 1, par pas de 0,2.

## Conclusion du chapitre

Les boîtes quantiques forment un piège pour les porteurs de charge, de dimensions petites devant leur longueur d'onde de De Broglie, ce qui impose une discrétisation de leurs niveaux d'énergie. De telles structures nanométriques peuvent être fabriquées de différentes façons, par voie chimique pour les nanocristaux colloïdaux, par voie épitaxiée pour les boîtes quantiques auto-organisées telles que les boîtes en InAs que nous utilisons. Dans ce dernier cas, les boîtes sont fabriquées avec un semiconducteur à faible bande interdite (gap) tel que l'InAs, au sein d'un semi-conducteur à grand gap tel que le GaAs. Elles sont donc entourées par un semiconducteur massif et une couche de mouillage en InAs qui est puits quantique subsistant du processus de fabrication. Cet environnement forme des continuums d'états dans lesquels un laser d'excitation à haute énergie (typiquement au-delà de 1,5 eV ou sous 800 nm) peut être absorbé très efficacement et créer de nombreuses paires électron-trou dont certaines relaxent et finissent piégées dans les niveaux discrets de la boîte quantique, à plus basse énergie.

Les mécanismes de relaxation que nous avons répertoriés ont été de vastes sujets de débats depuis les années 1990. Ils permettent la capture et le piégeage des charges depuis le continuum vers la boîte quantique, mais également la relaxation très efficace de l'énergie entre les niveaux discrets à l'intérieur du piège. Ce dernier point a été l'objet de multiples études qui ont mené notamment à la découverte du couplage fort exciton-phonon dans les boîtes (polarons excitoniques).

Si ces mécanismes de relaxation permettent en bout de chaîne l'émission de photons par la transition  $S_e - S_h$ , les fluctuations de l'environnement électrostatique en particulier dégradent la cohérence de la transition du dipôle excitonique et des photons émis. Cela peut être considérablement amélioré en utilisant une excitation résonnante à l'énergie de la transition, qui crée l'exciton directement dans les niveaux de plus basse énergie de la boîte quantique sans créer de multiples charges dans l'environnement. Un tel système peut être décrit par le modèle du système à deux niveaux, dans lequel les processus de décohérence résiduels sont pris en compte en utilisant le temps de déphasage pur  $T_2^*$ .

Le modèle du système à deux niveaux est étudié sous l'approche semi-classique, avec les équations de Bloch. Il permet dès ce chapitre de décrire certains comportements tels que le régime de diffusion Rayleigh (puissance d'excitation faible devant la puissance de saturation) dans lequel les photons du laser d'excitation sont diffusés élastiquement. Le laser pouvant être extrêmement monochromatique, cela signifie que cette grande cohérence est alors transférée sur les photons de photoluminescence. Comme l'émission d'une boîte quantique est une émission de photons uniques, c'est-à-dire que la probabilité de détecter deux photons simultanément est nulle, on parle parfois de tourniquet à photons, les photons du laser n'étant diffusés qu'un par un.

Pour observer les photons émis par le système à deux niveaux, il faut pouvoir détecter l'émission d'une boîte quantique unique. De plus, l'excitation à la résonance est difficile expérimentalement, le laser d'excitation pouvant être 8 ordres de grandeur plus intense que l'émission de la boîte quantique. Le montage expérimental, les échantillons utilisés et les mesures de caractérisation de base seront décrits au prochain chapitre.