

Calcul général des corrélateurs et effet du fond parasite

Pour les mesures de $g^{(1)}(\tau)$, nous avons établi au chapitre 3 que l'ajout d'un champ parasite dû au laser d'excitation est indispensable pour reproduire théoriquement les données expérimentales pour une boîte quantique sous excitation résonnante. Ce fond parasite est inhérent à l'excitation résonnante dans un milieu solide susceptible de contenir des diffuseurs dus à des défauts ou des impuretés. Nous nous en sommes précédemment abstraits pour décrire les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$ en maintenant une puissance d'excitation faible et en ajustant parfois les paramètres du modèle, mais cela n'est pas satisfaisant : certains comportements à haute puissance, avec un fond parasite fort, ne peuvent être prévus par le seul système à deux niveaux.

La prise en compte du fond parasite dans notre modèle théorique et la consécutive confrontation aux mesures est l'objectif de ce chapitre. Il est pour cela nécessaire de calculer des corrélateurs non-usuels comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.4. Une méthode générale pour calculer un corrélateur quelconque du champ émis par un système à deux niveaux est introduite, ce qui nous permet d'estimer $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$ en présence d'un fond laser parasite.

Nous analysons le comportement du modèle ainsi complété pour tous les régimes de puissance et les expliquons qualitativement, que ce soit pour $g^{(2)}(\tau)$ ou pour $g^{(2X)}(\tau)$. Nous constatons que les termes additionnels apparus dans les expressions de ces corrélateurs peuvent en effet causer, dans certaines conditions, un comportement de groupement des photons que nous avons observé expérimentalement (cf. figure 3.8). Ce phénomène est attribué à des interférences entre l'émission de photoluminescence et le champ parasite. La description des courbes expérimentales s'en trouve considérablement améliorée, en utilisant les temps caractéristiques T_1 et T_2 établis rigoureusement au chapitre 3.

5.1	Méthode générale de calcul d'un corrélateur à l'aide des superopérateurs . . .	148
5.2	Expression de $g^{(2)}(\tau)$ avec fond laser	153
5.3	Mesures d'indiscernabilité en présence d'un fond laser parasite	164
	Conclusion du chapitre	173

5.1 Méthode générale de calcul d'un corrélateur à l'aide des superopérateurs

Comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.4, l'ajout d'un champ parasite cohérent nous confronte à des corrélateurs que nous n'avons pas encore pu calculer, par exemple un corrélateur à trois champs de la forme $\langle E_-(t) E_-(t + \tau) E_+(t) \rangle$. Il est donc très utile de disposer d'une méthode générale permettant de calculer un corrélateur quelconque de manière systématique, ce que nous nous proposons de faire ici en utilisant le formalisme des superopérateurs.

5.1.1 Équation d'évolution

Tout d'abord, dans ce formalisme, le superopérateur décrivant les interactions et l'évolution du « vecteur » matrice densité $\underline{\rho}$ est appelé liouvillien ; il s'agit d'une matrice, notée $\underline{\mathcal{L}}$. Dans le formalisme des superopérateurs, l'équation de Liouville s'écrit :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] \quad \leftrightarrow \quad \frac{\partial \underline{\rho}}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} \underline{\mathcal{L}} \underline{\rho} \quad (5.1.1)$$

La matrice densité ρ décrivant l'état d'un système à deux niveaux correspond directement au vecteur $\underline{\rho}$ de la manière suivante :

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{ee} & \rho_{eg} \\ \rho_{ge} & \rho_{gg} \end{bmatrix} \quad \leftrightarrow \quad \underline{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{ee} \\ \rho_{eg} \\ \rho_{ge} \\ \rho_{gg} \end{pmatrix} \quad (5.1.2)$$

Dans le cas d'un système à deux niveaux excité à la résonance par un laser fluctuant, a priori, $\underline{\mathcal{L}}$ dépend du temps. On peut donc se placer dans le référentiel tournant du laser et utiliser les équations de Bloch optiques pour construire le liouvillien. Il est assez simple d'établir les équations suivantes à partir de 1.4.21a et 1.4.21b (p. 34) :

$$\frac{d\tilde{\rho}_{ee}}{dt} = -\frac{1}{T_1} \tilde{\rho}_{ee} - \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{ge} \quad (5.1.3a)$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_{eg}}{dt} = -\frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{ee} + \left(i\Delta - \frac{1}{T_2} \right) \tilde{\rho}_{eg} + \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{gg} \quad (5.1.3b)$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_{ge}}{dt} = \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{ee} + \left(-i\Delta - \frac{1}{T_2} \right) \tilde{\rho}_{ge} - \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{gg} \quad (5.1.3c)$$

$$\frac{d\tilde{\rho}_{gg}}{dt} = \frac{1}{T_1} \tilde{\rho}_{ee} + \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{eg} - \frac{i\Omega}{2} \tilde{\rho}_{ge} \quad (5.1.3d)$$

Dans ce cas, d'après (5.1.1), le liouvillien s'écrit :

$$-\frac{i}{\hbar}\tilde{\mathcal{L}} = \begin{bmatrix} -\frac{1}{T_1} & -\frac{i\Omega}{2} & \frac{i\Omega}{2} & 0 \\ -\frac{i\Omega}{2} & i\Delta - \frac{1}{T_2} & 0 & \frac{i\Omega}{2} \\ \frac{i\Omega}{2} & 0 & -i\Delta - \frac{1}{T_2} & -\frac{i\Omega}{2} \\ \frac{1}{T_1} & \frac{i\Omega}{2} & -\frac{i\Omega}{2} & 0 \end{bmatrix} \quad (5.1.4)$$

La matrice densité en régime stationnaire $\tilde{\rho}_{st}$ est alors la solution de l'équation :

$$0 = \tilde{\mathcal{L}}\tilde{\rho}_{st} \quad (5.1.5)$$

Il s'agira donc du vecteur propre associé à la valeur propre nulle du liouvillien.

5.1.2 Diagonalisation du liouvillien

La matrice de l'expression 5.1.4 peut être diagonalisée en trouvant les matrices de passage $[r_i]$ et $[r_i]^{-1}$ telles que :

$$-\frac{i}{\hbar}\tilde{\mathcal{L}} = [r_i] \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \omega_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \omega_3 \end{bmatrix} [r_i]^{-1} = [r_i] \text{diag}[\omega_i] [r_i]^{-1} \quad (5.1.6)$$

où r_i sont les vecteurs propres de $-\frac{i}{\hbar}\tilde{\mathcal{L}}$ associés aux valeurs propres ω_i , avec $\omega_0 = 0$.

L'inversion de la matrice de passage $[r_i]$ peut toutefois être assez longue, et il sera plus judicieux de diagonaliser la transposée du liouvillien ${}^t\tilde{\mathcal{L}}$ dont les vecteurs propres seront notés O_i , auquel cas on aura :

$$-\frac{i}{\hbar}\tilde{\mathcal{L}} = [\tilde{\rho}_i] \text{diag}[\omega_i] {}^t[O_i] \quad (5.1.7)$$

où $\tilde{\rho}_i = \frac{r_i}{r_i \cdot O_i}$ ($\square \cdot \square$ désignant ici un produit scalaire). Cette renormalisation des vecteurs propres r_i permet de s'assurer que $[r_i] {}^t[O_i] = \text{Id}$ (identité).

5.1.3 Superopérateur d'évolution

On définit le superopérateur d'évolution $\underline{U}(t, t_0)$ qui lie la matrice densité au temps t à la matrice de départ au temps t_0 . On a donc :

$$\underline{\rho}(t) = \underline{U}(t, t_0)\underline{\rho}(t_0) \quad (5.1.8)$$

Connaître le superopérateur d'évolution permet donc de calculer l'état de la matrice densité à n'importe quel temps, connaissant la matrice densité de départ, qui sera la matrice densité en régime stationnaire.

En utilisant la forme diagonalisée du liouvillien (5.1.7) dans l'équation de Liouville 5.1.1, le superopérateur d'évolution s'écrit :

$$\tilde{U}(t) = [\tilde{\rho}_i] \text{diag}[e^{-i\omega_i t}] {}^t[O_i] \quad (5.1.9)$$

5.1.4 Corrélateur

Nous avons vu au paragraphe 3.3.5 (p. 94) que mesurer une fonction de corrélation comme, par exemple, $g^{(2)}(t_1, t_2)$ revient à mesurer le taux $w_2(t_1, t_2)$ de comptage joint des photons aux instants t_1 et t_2 . Icelui s'exprime :

$$w_2(t_1, t_2) = \sum_f |\langle f | T E^{(+)}(t_2) E^{(+)}(t_1) | i \rangle|^2 \quad (5.1.10)$$

Du fait du principe de causalité, il est nécessaire que le premier champ appliqué à l'état initial $|i\rangle$ soit le premier mesuré. Pour s'en assurer sans supposer d'ordre préalable à t_1 et t_2 , on applique l'opérateur d'ordonnancement des temps T , tel que :

$$T E^{(+)}(t_2) E^{(+)}(t_1) = \begin{cases} E^{(+)}(t_2) E^{(+)}(t_1) & \text{si } t_2 \geq t_1, \\ E^{(+)}(t_1) E^{(+)}(t_2) & \text{si } t_2 < t_1. \end{cases} \quad (5.1.11)$$

En sommant sur l'ensemble des états initiaux et finaux, suivant le raisonnement du paragraphe 3.3.5, on montre que :

$$w_2(t_1, t_2) = \langle E^{(-)}(t_1) E^{(-)}(t_2) T^\dagger T E^{(+)}(t_2) E^{(+)}(t_1) \rangle \quad (5.1.12)$$

$$= \text{Tr} [E^{(-)}(t_1) E^{(-)}(t_2) T^\dagger T E^{(+)}(t_2) E^{(+)}(t_1) \rho_{\text{st}}] \quad (5.1.13)$$

où ρ est la matrice densité du système à deux niveaux dans l'état stationnaire, supposée décrire l'état du système avant la mesure.

On peut écrire l'expression ci-dessus comme :

$$w_2(t_1, t_2) = \text{Tr} [E^{(-)}(t_\alpha) E^{(-)}(t_\beta) E^{(+)}(t_\beta) E^{(+)}(t_\alpha) \rho_{\text{st}}] \quad (5.1.14)$$

où t_α et t_β correspondent à t_1 et t_2 tel que $t_\alpha \leq t_\beta$.

Afin d'appliquer les opérateurs dans l'ordre des temps, c'est-à-dire les champs à t_α d'abord, puis les champs à t_β , on peut effectuer une permutation circulaire, qui conserve la trace. Ainsi :

$$w_2(t_1, t_2) = \text{Tr} [E^{(+)}(t_\beta) E^{(+)}(t_\alpha) \rho_{\text{st}} E^{(-)}(t_\alpha) E^{(-)}(t_\beta)] \quad (5.1.15)$$

où l'on appliquera les opérateurs dans l'ordre des temps croissants, par exemple :

$$w_2(t_1, t_2) = \text{Tr} \left\{ \left[E^{(+)}(t_\beta) \left((E^{(+)}(t_\alpha) \rho_{\text{st}}) E^{(-)}(t_\alpha) \right) \right] E^{(-)}(t_\beta) \right\} \quad (5.1.16)$$

L'un des avantages du formalisme des superopérateurs à ce stade est qu'il permet de simplifier ces opérations en appliquant les superopérateurs sous leur forme « appliqué à gauche » ou « appliqué à droite » au vecteur matrice densité. Concrètement, l'exemple de $w_2(t_1, t_2)$ ci-dessus devient :

$$w_2(t_1, t_2) = \text{Tr} [\underline{E}_b^{(-)}(t_\beta) \underline{E}_a^{(+)}(t_\beta) \underline{E}_b^{(-)}(t_\alpha) \underline{E}_a^{(+)}(t_\alpha) \underline{\rho}_{\text{st}}] \quad (5.1.17)$$

où $\underline{\text{Tr}}$ désigne la supertrace, qui correspond à la trace usuelle dans l'espace de Hilbert en sommant le premier et le dernier terme du vecteur matrice densité ; les indices a et b distinguent les situations où l'opérateur est appliqué respectivement à gauche ou à droite, tel que :

$$\underline{E}_a \underline{\rho} \leftrightarrow E_a \rho \quad (5.1.18)$$

$$\underline{E}_b \underline{\rho} \leftrightarrow \rho E_b \quad (5.1.19)$$

Ainsi, les permutations ne sont plus nécessaires et on change simplement la forme du superopérateur entre sa forme a (appliqué à gauche) et sa forme b (appliqué à droite).

On pourra remarquer que les champs de fréquence négative $E^{(-)}$ seront toujours appliqués à droite, tandis que les champs $E^{(+)}$ seront appliqués à gauche. On peut ainsi définir une forme générale de corrélateur :

$$C = \left\langle O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m}) T^\dagger T O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n}) \right\rangle \quad (5.1.20)$$

$$= \text{Tr} \left[O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m}) T^\dagger T O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n}) \rho \right] \quad (5.1.21)$$

$$= \text{Tr} \left[T O_{a_1}(t_{a_1}) \dots O_{a_n}(t_{a_n}) \rho O_{b_1}(t_{b_1}) \dots O_{b_m}(t_{b_m}) T^\dagger \right] \quad (5.1.22)$$

où O désigne une observable.

Ainsi les opérateurs a et b agissent bien respectivement à gauche et à droite de la matrice densité ρ , et ils devront être appliqués à ρ dans l'ordre des temps t_i . En passant au formalisme des superopérateurs, l'expression ci-dessous devient :

$$C = \underline{\text{Tr}} \left[\underline{T} \underline{O}_{b_1}(t_{b_1}) \dots \underline{O}_{b_m}(t_{b_m}) \underline{O}_{a_1}(t_{a_1}) \dots \underline{O}_{a_n}(t_{a_n}) \underline{\rho} \right] \quad (5.1.23)$$

$$= \underline{\text{Tr}} \left[\underline{O}_{\pi_N}(t_{\pi_N}) \dots \underline{O}_{\pi_1}(t_{\pi_1}) \underline{\rho} \right] \quad (5.1.24)$$

où $\pi_1, \dots, \pi_N$ sont les indices $a_1, \dots, a_n, b_1, \dots, b_m$ ordonnés tels que $t_{\pi_1} \leq \dots \leq t_{\pi_N}$.

On peut finalement utiliser le superopérateur d'évolution pour écrire :

$$C = \underline{\text{Tr}} \left[\underline{O}_{\pi_N} \underline{U}(t_{\pi_N}, t_{\pi_{N-1}}) \underline{O}_{\pi_{N-1}} \dots \underline{U}(t_{\pi_2}, t_{\pi_1}) \underline{O}_{\pi_1} \underline{\rho} \right] \quad (5.1.25)$$

5.1.5 Opérateurs dipolaires

Dans la suite nous nous intéresserons à des corrélations du champ émis par la boîte quantique. On rappelle que d'après (1.4.27), on a :

$$E^{(+)}(t) \propto S_-(t) \quad (5.1.26)$$

où les opérateurs dipolaires peuvent s'écrire à l'instant t , dans le point de vue de Schrödinger :

$$S_- = |g\rangle\langle e| \quad (5.1.27)$$

$$S_+ = |e\rangle\langle g| \quad (5.1.28)$$

Afin de trouver leur expression, on utilisera le fait que la matrice densité ρ est telle que :

$$\rho = \sum_{i,j \in \{e,g\}} \rho_{ij} |i\rangle \langle j| \quad (5.1.29)$$

Ainsi il est possible de calculer $S_- \rho$ et ρS_+ :

$$\begin{aligned} S_- \rho &= \sum_{i,j \in \{e,g\}} \rho_{ij} |g\rangle \langle e|i\rangle \langle j| \\ &= \rho_{ee} |g\rangle \langle e| + \rho_{eg} |g\rangle \langle g| \end{aligned} \quad (5.1.30)$$

De même :

$$\rho S_+ = \rho_{ge} |e\rangle \langle e| + \rho_{gg} |e\rangle \langle g| \quad (5.1.31)$$

Les superopérateurs associés à S_- et S_+ doivent alors vérifier :

$$\underline{S}_{a,-} \underline{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{ge} \\ \rho_{ee} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \underline{S}_{b,+} \underline{\rho} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ \rho_{ee} \\ \rho_{eg} \end{pmatrix} \quad (5.1.32)$$

Et on établit finalement l'expression de $\underline{S}_{a,-}$ et $\underline{S}_{b,+}$:

$$\underline{S}_{a,-} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \underline{S}_{b,+} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \quad (5.1.33)$$

Les opérateurs S_- s'appliquant toujours à gauche et les opérateurs S_+ toujours à droite, on ne précisera plus l'indice a ou b . De plus, comme le commutateur $[S_-, S_+] = 0$, l'ordre des opérateurs appliqués à un même temps n'importe pas.

5.1.6 Corrélateurs usuels

À l'aide de la méthode exposée au paragraphe 5.1.4, on peut construire les fonctions d'autocorrélation usuelles, à savoir dans un premier temps $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ et $\tilde{G}^{(2)}(\tau)$, exprimées dans le référentiel tournant du laser :

$$\tilde{G}^{(1)}(\tau) = \text{Tr} \left[\underline{S}_- \underline{\tilde{U}}(\tau) \underline{S}_+ \underline{\tilde{\rho}}_{\text{st}} \right] \quad (5.1.34)$$

$$\tilde{G}^{(2)}(\tau) = \text{Tr} \left[\underline{S}_+ \underline{S}_- \underline{\tilde{U}}(\tau) \underline{S}_+ \underline{S}_- \underline{\tilde{\rho}}_{\text{st}} \right] \quad (5.1.35)$$

Comme expliqué aux paragraphes 3.2.1 (p. 78) et 3.3.2 (p. 90), si l'on passe maintenant dans le référentiel du laboratoire :

$$G^{(1)}(\tau) = e^{-\frac{\tau}{T_L}} e^{-i\omega_L \tau} \tilde{G}^{(1)}(\tau) \quad (5.1.36)$$

$$G^{(2)}(\tau) = \tilde{G}^{(2)}(\tau) \quad (5.1.37)$$

et leurs expressions normalisées sont :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-\frac{\tau}{T_L}} e^{-i\omega_L \tau} \frac{\tilde{G}^{(1)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)} \quad (5.1.38)$$

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\tilde{G}^{(2)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)^2} \quad (5.1.39)$$

Ces valeurs seront calculées en diagonalisant numériquement le liouvillien. Il est également possible d'utiliser un logiciel de calcul formel pour vérifier qu'on obtient les mêmes expressions que celles obtenues par des méthodes classiques utilisant le théorème de régression quantique. La méthode et les expressions obtenues sont toutefois très lourdes et nous ne les traiterons pas ici.

5.2 Expression de $g^{(2)}(\tau)$ avec fond laser

Dans le développement donné par l'expression (3.3.17) établie au paragraphe 3.3.4 (p. 92), certains corrélateurs n'avaient pas d'expression analytique simple à calculer. En utilisant un calcul numérique et le formalisme des super-opérateurs, ces corrélateurs peuvent à présent être calculés :

$$\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle = \text{Tr} \left[\underline{S}_+ \underline{S}_- \underline{\tilde{U}}(\tau) \underline{S}_+ \underline{\tilde{\rho}}_{\text{st}} \right] \quad (5.2.1)$$

$$\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t) \rangle = \text{Tr} \left[\underline{S}_+ \underline{\tilde{U}}(\tau) \underline{S}_- \underline{S}_+ \underline{\tilde{\rho}}_{\text{st}} \right] \quad (5.2.2)$$

$$\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \rangle = \text{Tr} \left[\underline{S}_+ \underline{\tilde{U}}(\tau) \underline{S}_+ \underline{\tilde{\rho}}_{\text{st}} \right] \quad (5.2.3)$$

Dans cette section, nous allons commencer par confronter le modèle théorique, c'est-à-dire l'expression (3.3.17) ainsi complétée, aux mesures de $g^{(2)}(\tau)$, en particulier dans le cas des hautes puissances d'excitation. En effet, nous avons vu au paragraphe 3.3.4, sur la figure 3.8, que la statistique de dégroupement des photons attendue pour la photoluminescence d'une boîte quantique peut s'inverser à haute puissance, où apparaît un pic caractéristique du groupement des photons. Ce phénomène ne peut être décrit en ne considérant que l'émission d'un système à deux niveaux, et nous allons voir que l'ajout d'un champ parasite cohérent dans le modèle permet d'expliquer le comportement mesuré. Nous analyserons par la suite le rôle de chacun des termes de l'expression (3.3.17) pour comprendre l'effet du champ parasite sur $g^{(2)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation.

5.2.1 Modèle du diffuseur élastique

Ce modèle a été décrit brièvement pour la prise en compte du fond parasite dans $g^{(1)}(\tau)$ à la section 3.2. Comme nous allons ici nous pencher plus en détails sur les

effets de ce fond parasite dans $g^{(2)}(\tau)$ et $g^{(2X)}(\tau)$, commençons par rappeler ses caractéristiques.

Comme représenté sur la figure 5.1, on considère une boîte quantique sous excitation résonnante, où le laser d'excitation est injecté par la tranche de l'échantillon, comme dans notre montage expérimental (cf. figure 2.6). À proximité de la boîte quantique, un unique diffuseur élastique et linéaire émet un champ parasite vers le système de détection.

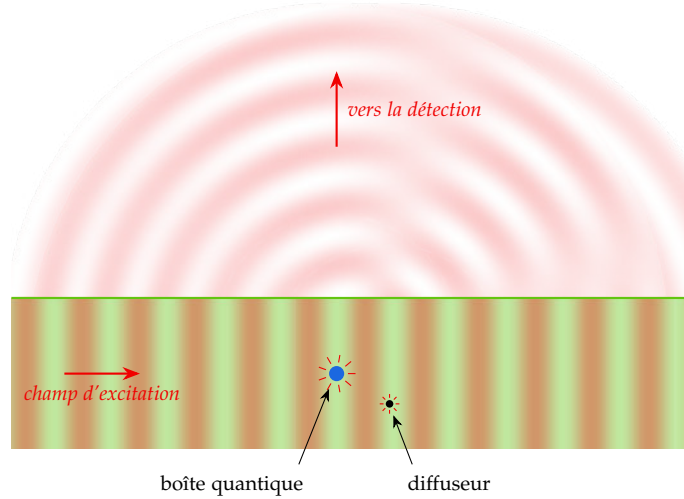


FIGURE 5.1 — Modèle du diffuseur élastique du champ parasite.

Ce diffuseur émet donc un champ α , d'amplitude $\tilde{\alpha}$, parfaitement cohérent avec le laser (diffusion élastique) et proportionnel au champ d'excitation (diffusion linéaire). Comme le paramètre de saturation de la boîte quantique, noté s_0 , est proportionnel à l'intensité d'excitation, on en déduit que :

$$\tilde{\alpha} \propto \sqrt{s_0} \quad (5.2.4)$$

Ainsi, on quantifiera le champ parasite dû au diffuseur par la quantité $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$. De plus, comme nous l'avons précisé au paragraphe 3.2.6, cette quantité est normalisée par rapport à l'intensité émise par la boîte quantique à basse puissance. $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ est alors directement exprimée comme un pourcentage du champ de photoluminescence dans le régime de diffusion Rayleigh. Le pourcentage relatif à l'intensité sera donc $\tilde{\alpha}^2/s_0$.

5.2.2 Confrontation aux mesures

Les précédentes mesures de $g^{(2)}(\tau)$ du paragraphe 3.3.7 avaient été limitées en puissance d'excitation afin de ne pas être affectées par le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

Pour confronter aux mesures le nouveau modèle prenant en compte le fond parasite, l'expérience du paragraphe 3.3.7 a été répétée en explorant également les très hautes puissances — pour chaque puissance d'excitation, nous avons mesuré $g^{(2)}(\tau)$. Pour la session de mesure présentée sur la figure 5.2, la puissance d'excitation varie d'une valeur inférieure à la saturation ($s_0 = 0,48$) jusqu'à une valeur égale à 150 fois le niveau de saturation.

Lorsque la puissance est inférieure à $s_0 = 10,5$, on observe un phénomène de dégroupement des photons, soit $g^{(2)}(0) < 1$. Ainsi, pour $s_0 = 0,48$, on mesure $g^{(2)}(0) = 0,35 \pm 0,02 < 0,5$. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, la boîte quantique est un émetteur de photons uniques, observer un dégroupement des photons est donc logique. En revanche, au-delà de $s_0 = 27,1$, les photons apparaissent groupés autour de $\tau = 0$, c'est-à-dire qu'on mesure $g^{(2)}(0) > 1$. À $s_0 = 151$, on obtient ainsi $g^{(2)}(0) = 1,11 \pm 0,01$. Il y a donc inversion du comportement observé par notre système de détection : à basse puissance, les photons sont dégroupés, à haute puissance, ils sont groupés.

A priori, avec notre modèle de fond laser parasite, les seules composantes présentes sont celles de la photoluminescence de la boîte (une émission de photons uniques dégroupés) et l'émission poissonnienne du laser (pour laquelle $g^{(2)}(\tau) = 1$ pour tout τ). Une simple somme de ces deux composantes ne peut expliquer le groupement que l'on mesure à haute puissance, il s'agit donc nécessairement d'un phénomène d'interférences — ce qui est pris en compte avec notre modèle.

Les courbes rouges continues sont les ajustements théoriques prenant en compte le fond laser avec le modèle développé dans ce chapitre. Ces ajustements ont été faits uniquement sur la valeur de la puissance de saturation et la constante complexe $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ décrivant le champ parasite. Pour cette session de mesure, on estime :

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = (0,058 \pm 0,005) \cdot \exp [i(0,99 \pm 0,06)] \quad (5.2.5)$$

Cette amplitude correspond à une intensité de 0,34% de l'intensité de photoluminescence. La valeur de ce paramètre sera discutée plus en détails au paragraphe 5.2.4 (p. 162).

Les courbes théoriques s'ajustent fidèlement aux courbes expérimentales, et parviennent en particulier à reproduire le groupement des photons à haute puissance. À titre de comparaison, les courbes vertes pointillées sont des courbes tracées dans les mêmes conditions, mais sans le fond laser parasite. Celles-ci ne présentent jamais de groupement des photons : par exemple à $s_0 = 151$, la théorie prévoit $g^{(2)}(0) = 0,99$ alors que l'on mesure $g^{(2)}(0) = 1,11 \pm 0,01$. On rappelle que le fait que $g^{(2)}(0) > 0$ sans fond laser est uniquement lié à la convolution de $g^{(2)}(\tau)$ par la réponse instrumentale.

Il est important de noter un changement également à basse puissance, puisque pour $s_0 = 0,48$, on mesure $g^{(2)}(0) = 0,35 \pm 0,02$ alors qu'en l'absence de fond laser la théorie prévoit 0,27. Comme nous le verrons au paragraphe suivant, certains

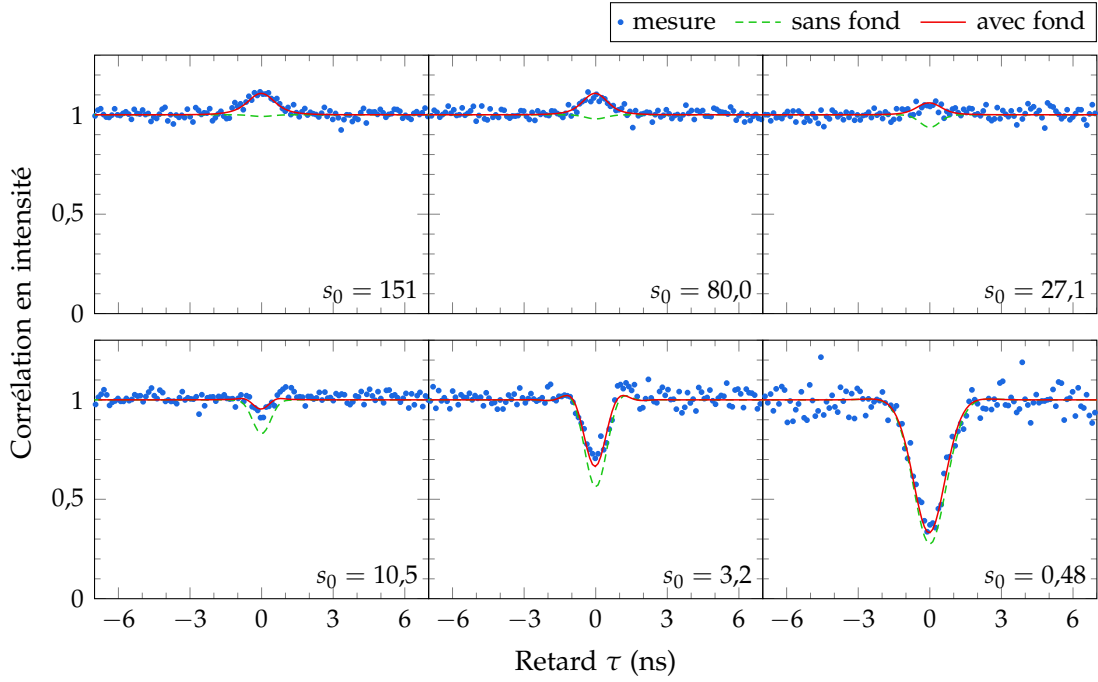


FIGURE 5.2 — Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, incluant des mesures à très haute puissance.

termes parasites subsistent à la limite des faibles puissances. Tout ceci pourrait conduire à remettre en question les conclusions du chapitre 3, où les temps T_1 et T_2 ont été estimés en ajustant $g^{(2)}(\tau)$ sans fond laser. Toutefois, l'effet du fond est essentiellement ressenti sur la profondeur du creux de dégroupement et la valeur de $g^{(2)}(0)$, mais a peu d'effet sur la largeur de la courbe, qui permet d'évaluer les temps caractéristiques. Pour la mesure à $s_0 = 0,48$, la largeur à mi-hauteur du creux de dégroupement est de 1,6 ns dans les deux cas*. Nous négligerons donc l'effet du fond laser sur les temps caractéristiques. Dans les courbes théoriques présentées ici, nous utilisons les valeurs de T_1 et T_2 évaluées au chapitre 3, c'est-à-dire $T_1 = 0,37$ ns et $T_2 = 0,54$ ns, qui aboutissent à des ajustements très satisfaisants. Pour la fin de ce chapitre, en partie consacrée aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, nous étudierons l'effet de la prise en compte du fond laser en utilisant également ces temps caractéristiques.

5.2.3 Analyse du comportement des termes parasites

Le développement de $G^{(2)}(\tau)$ en présence d'un champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation est donné par (3.3.17) (p. 93). Ce résultat comporte

* L'ajustement sans fond laser du chapitre 3 rattrape la déformation due au fond parasite en changeant l'estimation de la puissance de saturation. Cela conduit seulement à une surestimation du paramètre de saturation.

huit termes qui dépendent différemment de la puissance d'excitation. Nous nous intéresserons ici à la description de ces termes et à la façon dont ils participent au comportement de $g^{(2)}(\tau)$ observé dans les mesures, puis nous verrons comment ils évoluent en théorie lorsque l'on change la puissance d'excitation.

Rôle de chaque terme dans $g^{(2)}(\tau)$

L'expression (3.3.17) est rappelée ici (numérotée (5.2.6)) et la figure 5.3 montre la dépendance temporelle des différents termes pour une puissance d'excitation correspondant à $s_0 = 10$. Chaque terme numéroté de l'expression (5.2.6) a été tracé en fonction de τ , et il est normalisé comme $g^{(2)}(\tau)$, c'est-à-dire que l'on divise la valeur brute par I^2 où I représente l'intensité totale (photoluminescence + diffusion parasite). En faisant la somme de ces huit courbes, on obtient $g^{(2)}(\tau)$. Les graphes de la ligne inférieure du tableau sont simplement un agrandissement de ceux de la ligne supérieure, afin de mieux distinguer les différentes contributions. La colonne de gauche correspond à des courbes théoriques non convoluées et celle de droite à des courbes convoluées par la réponse instrumentale du système de détection. On aura ainsi une idée plus concrète de l'effet des différents termes sur une mesure de $g^{(2)}(\tau)$. Les temps caractéristiques utilisés sont ceux de la boîte QDIII-bis, c'est-à-dire $T_1 = 0,37$ ns et $T_2 = 0,54$ ns. La constante complexe $\tilde{a}$ représentant le champ laser parasite vaut ici $0,058 \cdot \exp(i0,99) \cdot \sqrt{s_0}$, d'après (5.2.5), valeur établie au paragraphe précédent en se basant sur les mesures expérimentales de $g^{(2)}(\tau)$.

Commençons par nous intéresser à la colonne de gauche de la figure 5.3, où les courbes théoriques sont tracées sans être convoluées par la réponse instrumentale. À cette puissance d'excitation ($s_0 = 10$), l'essentiel de $g^{(2)}(\tau)$ est dû au terme **1**, c'est-à-dire à $G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ qui est la fonction d'autocorrélation de l'intensité émise par la boîte quantique, sans champ parasite. Les termes additionnels les plus importants sont les termes **5** et **6** qui correspondent à des corrélateurs champ-intensité, le terme **3** qui est une constante, produit des intensités de la boîte et du laser parasite, et enfin le terme **4** qui correspond au produit des $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ pour la boîte et le laser parasite. Si l'on s'intéresse plus particulièrement à la valeur à $\tau = 0$, l'ensemble des termes précédents s'annule, à l'exception de **3** et **4**. En particulier, **4** présente un pic autour de $\tau = 0$ caractéristique de $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$, qui est associé à un comportement de groupement des photons. Les termes **2**, **7** et **8** sont très petits. Seul **2** jouera un rôle à très haute puissance (ce que nous verrons au paragraphe suivant) puisqu'il s'agit de $|\tilde{a}|^4$, soit $G^{(2)}(\tau)$ pour l'émission du laser.

Si l'on étudie à présent les courbes convoluées par la réponse instrumentale (colonne de droite de la figure 5.3), on constate que le comportement des courbes autour de $\tau = 0$ est fortement affecté. D'abord, l'amplitude du creux de dégroupement dû au terme **1**, c'est-à-dire à $G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$, a énormément diminué : alors que cette amplitude valait 0,8 pour la courbe sans convolution, elle n'est plus que de 0,14 après

$$\begin{aligned}
G^{(2)}(\tau) \propto & \underbrace{G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)}_1 + \underbrace{|\tilde{\alpha}|^4}_2 + \underbrace{2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\text{QD}}}_3 + \left[\underbrace{|\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau)}_4 \right. \\
& + \underbrace{\tilde{\alpha} \langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle}_5 + \underbrace{\tilde{\alpha} \langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t) \rangle}_6 \\
& \left. + \underbrace{\tilde{\alpha}^2 \langle \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_+(t) \rangle}_7 + \underbrace{2\tilde{\alpha}|\tilde{\alpha}|^2 \langle \tilde{S}_+(t) \rangle}_8 + \text{c.c.} \right] \quad (5.2.6)
\end{aligned}$$

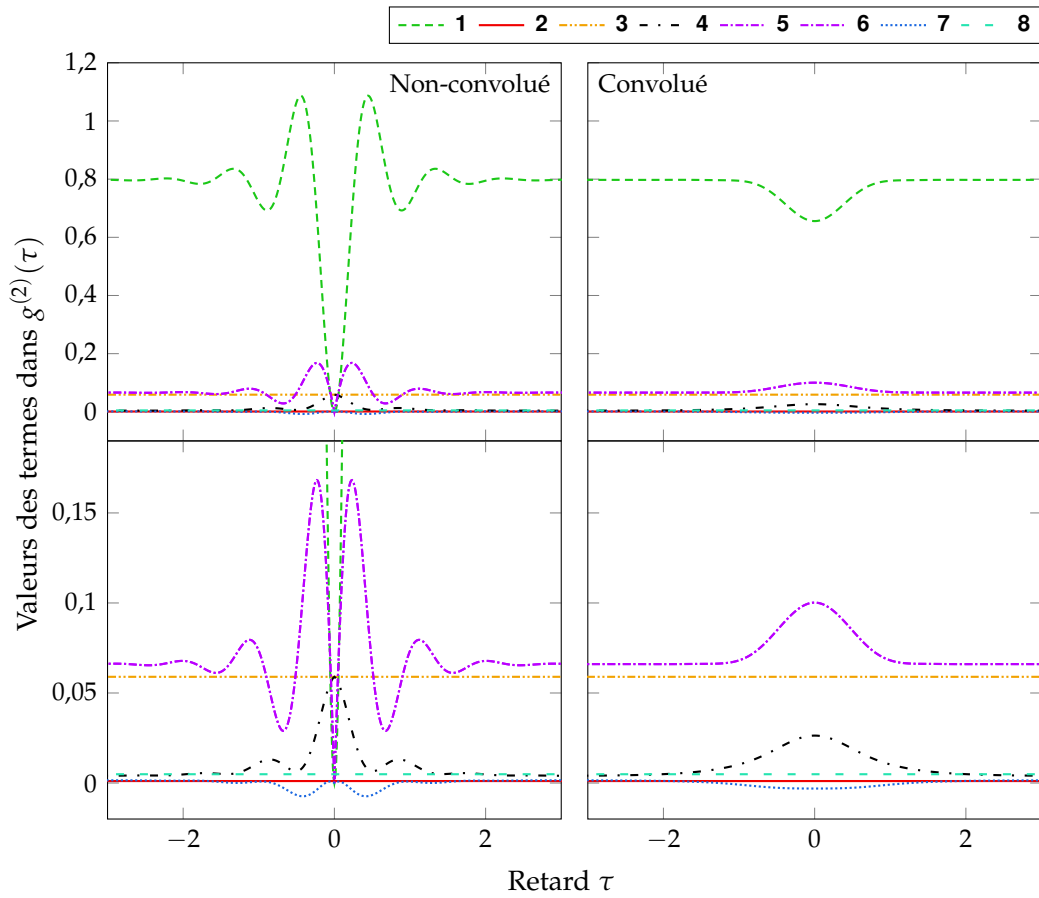


FIGURE 5.3 — Comportement des termes de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, pour une puissance d'excitation $s_0 = 10$. Les graphes de la ligne inférieure sont des agrandissements de ceux de la ligne supérieure.

convolution. De même pour les corrélateurs champ–intensité des termes **5** et **6** : s’ils présentaient un creux de dégroupement des photons autour de $\tau = 0$, celui-ci disparaît avec la convolution et le comportement résultant est inversé avec un pic décrivant un groupement des photons. Enfin, le terme **3** n’est pas affecté puisqu’il s’agit d’une constante correspondant au produit des intensités du laser parasite et de la boîte ; alors que le terme **4** qui correspond au produit des $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ est affaibli mais continue à décrire un phénomène de groupement.

Le bilan de l’ensemble de ces termes lorsque les courbes théoriques sont convoluées par la réponse instrumentale du système de détection est que, dans l’ensemble, les termes parasites décrivent soit une statistique poissonnienne (constante), soit un groupement des photons (pic à $\tau = 0$) que nous n’aurions pas pu décrire en ajoutant uniquement une constante à $G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$. Ces termes prenant plus d’importance avec la puissance, cela explique pourquoi le groupement apparaît à haute puissance dans les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ de la figure 5.2.

Comportement en puissance des termes parasites

Sur la figure 5.4 sont représentées les dépendances en puissance d’excitation de chacun des termes de (5.2.6), pour deux valeurs du retard, $\tau = -7$ ns pour le graphe (a), et $\tau = 0$ ns pour (b) et (c). Les valeurs à $\tau = -7$ ns représentent les valeurs aux temps longs ($|\tau| \gg T_1, T_2$). Elle ne sont pas influencées par une convolution par la réponse instrumentale, contrairement à celles obtenues à $\tau = 0$ qui sont fortement affectées, comme nous l’avons vu au paragraphe précédent sur la figure 5.3. Ainsi, sur la figure 5.4 le graphe (b) correspond aux courbes non-convoluées, et (c) correspond aux courbes convoluées.

Analysons terme par terme les courbes de la figure 5.4, à l’exception des termes **7** et **8** qui ont des amplitudes très faibles devant les autres.

Termes 2 et 3 indépendants de τ : les termes **2** et **3** sont tous les deux constants en fonction de τ , et n’ont donc pas d’influence sur un comportement de groupement ou de dégroupement des photons. **2** est proportionnel à $|\tilde{\alpha}|^4$, c’est-à-dire au carré de l’intensité parasite, et **3** correspond au produit de l’intensité parasite avec l’intensité de photoluminescence résonnante. Pour $s_0 \gg 1$, lorsque le système à deux niveaux sature, l’intensité de photoluminescence est constante et ce dernier terme évolue donc en $|\tilde{\alpha}|^2$. Il croît donc plus vite lorsque s augmente que le terme **2** qui est lui en $|\tilde{\alpha}|^4$, mais ce dernier devient largement prédominant devant tous les autres pour $s_0 \gg 10^3$: la proportion d’intensité parasite devient alors la seule contribution significative.

Terme 1, dégroupement des photons de photoluminescence : le terme **1** correspond à la fonction d’autocorrélation $G^{(2)}(\tau)$ de l’intensité de photoluminescence résonnante

$$\begin{aligned}
G^{(2)}(\tau) \propto & \underbrace{G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)}_1 + \underbrace{|\tilde{\alpha}|^4}_2 + \underbrace{2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\text{QD}}}_3 + \left[\underbrace{|\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau)}_4 \right. \\
& + \underbrace{\tilde{\alpha} \langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle}_5 + \underbrace{\tilde{\alpha} \langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_-(t) \rangle}_6 \\
& \left. + \underbrace{\tilde{\alpha}^2 \langle \tilde{S}_+(t+\tau) \tilde{S}_+(t) \rangle}_7 + \underbrace{2\tilde{\alpha}|\tilde{\alpha}|^2 \langle \tilde{S}_+(t) \rangle}_8 + \text{c.c.} \right]
\end{aligned}$$

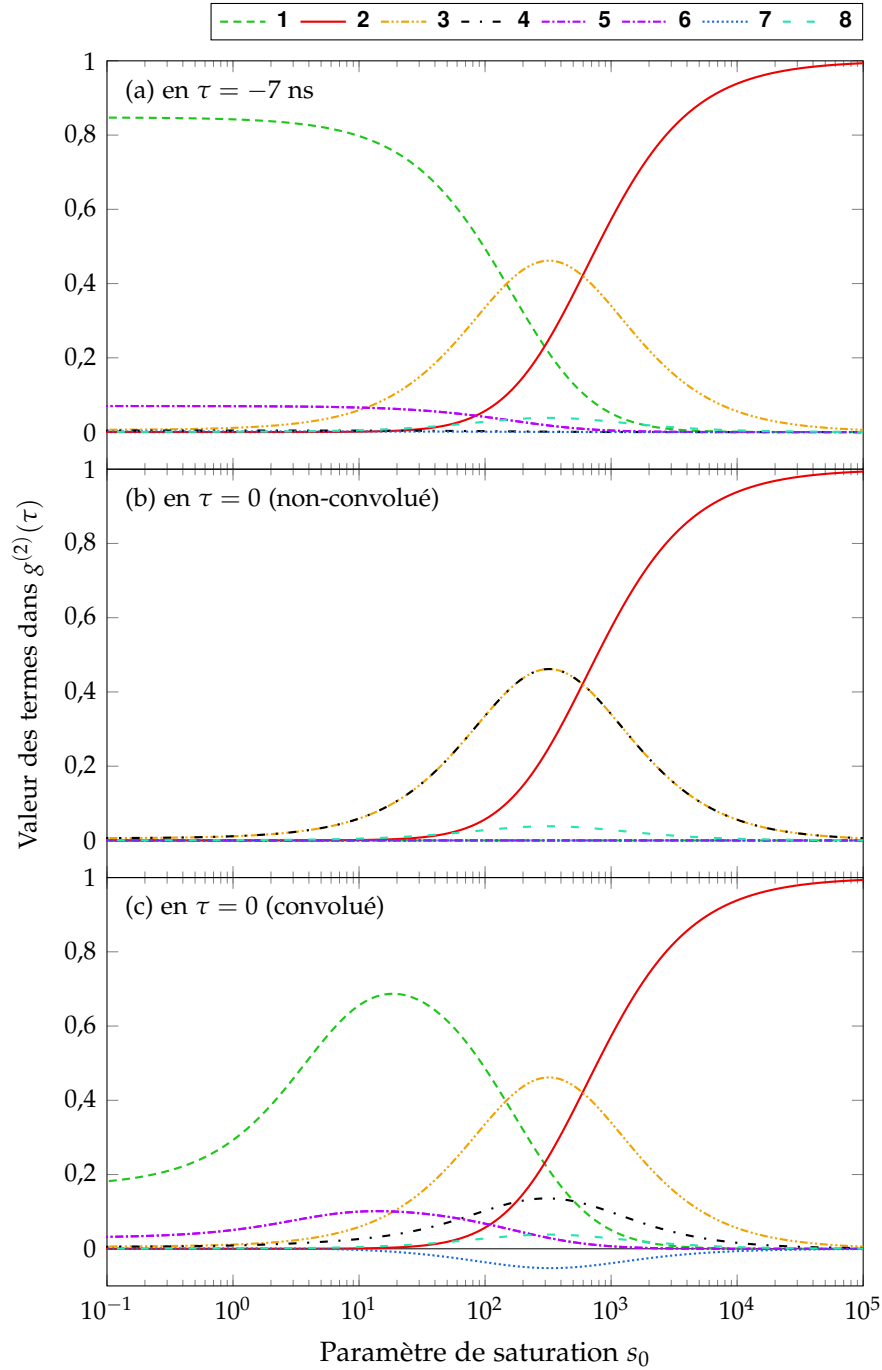


FIGURE 5.4 — Poids des différents termes dans $g^{(2)}(\tau \rightarrow \infty)$ et $g^{(2)}(\tau = 0)$, en convoluant ou non par la réponse instrumentale du système de détection.

seule, sans fond laser parasite ; il décrit donc le comportement d'une source de photons uniques. Aux temps longs (graphe (a)), ce terme est largement prédominant à basse puissance, pour $s_0 \ll 10^2$. Toutefois, à $\tau = 0$, la courbe **1** s'annule parfaitement à toutes les puissances dans le cas non-convolué par la réponse instrumentale (graphe (b)). Lorsque l'on prend en compte la résolution temporelle des détecteurs (graphe (c)), ce terme tend vers 0,17 à basse puissance. On retrouve donc le comportement décrivant le creux de dégroupement d'une source de photons uniques.

Lorsque la puissance augmente, la courbe de $G^{(2)}(\tau)$ oscille de plus en plus rapidement et la visibilité du creux de dégroupement se dégrade fortement : le terme **1** prend les mêmes valeurs à $\tau \rightarrow \infty$ (graphe (a)) et à $\tau = 0$ (graphe (c)) pour $s_0 \gg 10^1$. Le creux de dégroupement n'est alors plus résolu par le système de détection.

Termes 4, 5 et 6, groupement des photons pour $10^1 \ll s_0 \ll 10^3$: nous parlerons plus spécifiquement dans ce paragraphe des termes à l'origine du phénomène de groupement des photons mesuré à haute puissance (cf. figure 5.2). Il y a tout d'abord le terme **4** qui correspond au produit des fonctions $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$ pour le champ d'émission résonnante et pour le champ laser parasite. Comme attendu, ce terme prend une valeur maximale à $\tau = 0$ (graphe (b)) et s'annule aux temps longs (graphe (a)). L'effet est amoindri mais reste présent dans le graphe (c) lorsque la réponse instrumentale est prise en compte. Ce terme est responsable de l'essentiel du groupement observé entre $s_0 = 10^2$ et 10^3 .

Les termes **5** et **6** sont des produits entre un champ parasite $\tilde{\alpha}$ et un corrélateur à trois champs d'émission résonnante — que l'on appelle corrélateur intensité–champ. En comparant les courbes correspondantes dans les graphes (a) et (c), on constate que lorsque l'on prend en compte la réponse instrumentale, ces termes prennent une valeur plus grande à $\tau = 0$ qu'aux temps longs, ce qui signifie qu'ils décrivent un comportement de groupement des photons.

Ces termes semblent également être les seuls termes parasites qui subsistent à basse puissance, ce qui est visible sur le graphe (a). Cependant, les courbes ont été tracées ici avec un champ parasite petit devant le champ de photoluminescence ; en réalité, la plupart des termes parasites ne disparaissent pas complètement. Il est logique qu'ils subsistent puisque même à basse puissance, un certain pourcentage des photons sera diffusé par le canal parasite. On retiendra toutefois que les corrélateurs intensité–champ sont très robustes et ne sont pas négligeables, même avec un champ parasite faible.

Ces corrélateurs intensité–champ sont parfois notés $g^{(1,5)}(\tau)$ ou $g^{(3/2)}(\tau)$. Ils permettent de mesurer directement le champ après avoir détecté un photon à $\tau = 0$, ce qui correspond à une préparation du système à deux niveaux dans l'état fondamental [GERBER, ROTTER, SLODIČKA *et al.* 2009]. Cela peut permettre notamment de mesurer la compression du champ électrique [FOSTER *et al.* 2002 ; VOGEL 1991].

5.2.4 Amplitude du champ parasite, désaccord avec les mesures de PLE et limites du modèle

Au paragraphe 5.2.2, nous avons établi que $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ prenait une valeur de $0,058 \cdot \exp(i0,99)$ (expression (5.2.5)) en ajustant nos mesures expérimentales de $g^{(2)}(\tau)$ avec ce paramètre, ce qui correspond en intensité à 0,34% de l'intensité de photoluminescence. En pratique, l'ensemble des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ effectuées sur QDIII-bis et sur B47-9 donnent une amplitude de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ entre 0,04 et 0,11 suivant les sessions de mesure (soit, en intensité, 0,2 à 1,2% de l'intensité de photoluminescence). Nous avons également utilisé le modèle du fond parasite avec les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ du chapitre 3. Pour ces mesures, les valeurs de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ utilisées sont plutôt de l'ordre de 0,15 à 0,2, c'est-à-dire une amplitude deux à cinq fois supérieures à celles déduites des mesures de $g^{(2)}(\tau)$, et une intensité entre 2 et 4% de l'intensité de photoluminescence. De plus, dans le cas des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ comme de $g^{(2)}(\tau)$, la valeur de la phase de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ varie fortement d'une session de mesure à l'autre, restant en général entre $-\pi/2$ et $\pi/2$, sans que nous puissions observer de tendance particulière.

Il semble donc qu'il y ait des incohérences entre les valeurs de l'amplitude du fond parasite établies à partir des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et de $g^{(2)}(\tau)$, mais aussi sur la phase d'un jour à l'autre.

Est-il alors possible de mesurer directement l'intensité de la diffusion parasite ? Une solution serait d'utiliser un spectre de PLE résonnante à très basse puissance, de manière à ne pas saturer le système à deux niveaux et ainsi estimer le rapport entre le fond et l'intensité du pic de photoluminescence résonnante correspondant à la transition excitonique.

Une mesure de spectre de PLE résonnante effectuée à une puissance correspondant à $s = 0,46$ est tracée sur le graphe supérieur de la figure 5.5. Cette mesure a été effectuée le même jour et dans les mêmes conditions que pour les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ présentées sur la figure 5.2.

Tout d'abord, on voit sur cette mesure les deux pics associés à la structure fine de l'exciton de la boîte QDIII-bis (pour plus de détails, cf. paragraphe 2.3.4, p. 66) desquels nous n'étudions que le pic à plus haute énergie. Ensuite, un fond très important est présent. Cette mesure est ajustée par la somme de deux profils de Voigt et un fond affecté d'une pente*. Cette pente permet d'extraire la valeur de l'intensité du fond au niveau du pic de résonance de l'exciton, et la valeur au sommet du pic permet de connaître l'intensité de photoluminescence et du fond que nous

* La présence d'une pente sur le fond de la mesure de PLE est due au fonctionnement de la diode laser. Pour changer l'énergie d'émission, la taille de la cavité est modifiée. Afin d'éviter les sauts d'un mode longitudinal à un autre, le courant d'alimentation de la diode laser est modifié pour décaler la courbe de gain (fonction appelée *feed-forward*) et le maintenir centré sur le même mode longitudinal malgré le changement de longueur de cavité.

appellerons intensité totale, sachant qu'il peut y avoir des interférences entre les deux composantes. On mesure ainsi au sommet du pic une intensité de $38,9 \cdot 10^3$ photons/s, tandis que le fond vaut $8,45 \cdot 10^3$ photons/s, ce qui permet d'estimer un rapport de l'intensité du fond sur l'intensité totale de 22%.

Étudions à présent le spectre de PLE résonnante prévu par le modèle, qui est tracé sur le graphe inférieur de la figure 5.5. Il suffit pour ce faire d'utiliser la valeur de $G^{(1)}(0)$, qui est égale à l'intensité totale émise, et de modifier le désaccord Δ dans l'expression (5.1.4) du liouvillien. Comme le modèle ne prend pas en compte la structure fine de l'exciton, seule la raie à plus haute énergie est tracée. Afin d'évaluer l'effet du fond parasite, le spectre de PLE résonnante a été tracé avec et sans ce fond. Si l'on tente d'estimer le rapport entre l'intensité du fond et l'intensité totale, comme précédemment avec la mesure, on obtient une valeur inférieure à 0,5%, compatible avec la valeur de 0,34% estimée avec $\tilde{\alpha}$.

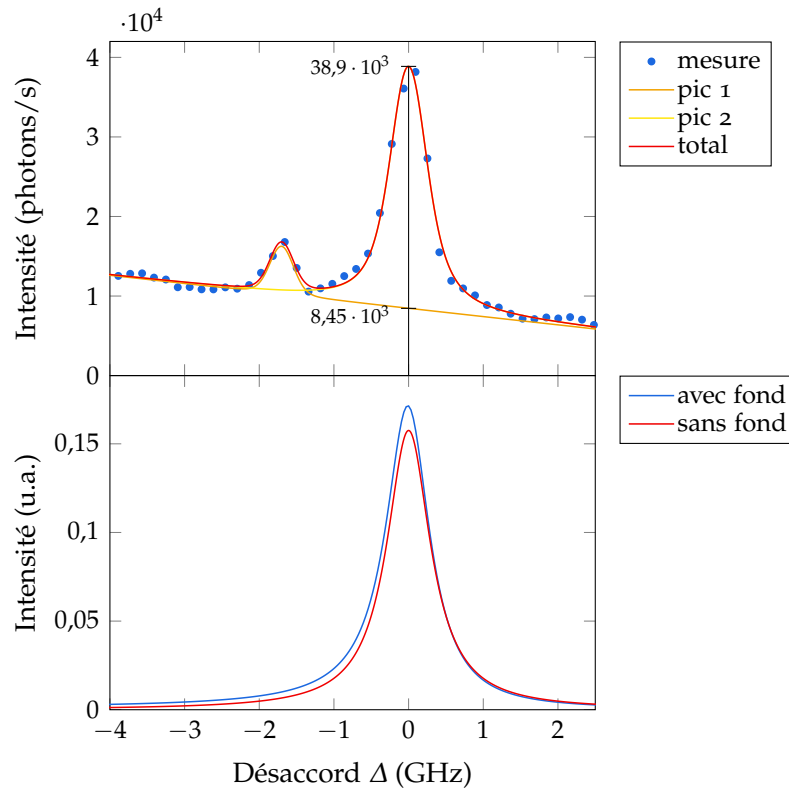


FIGURE 5.5 — Spectre d'excitation de la photoluminescence résonnante de l'exciton neutre de la boîte QDIII-bis. La puissance d'excitation correspond à $s_0 = 0,46$.

Le modèle prévoit donc une altération minime du spectre de PLE, sans commune mesure avec les 22% de fond mesurés. Or ce modèle semble prévoir correctement le comportement de l'ensemble des mesures de corrélation de $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ — et, comme nous allons le voir à la section suivante, également les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$. Le seul problème dans ce cas vient des incohérences que nous avons citées sur les

valeurs du paramètre $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$.

Nous touchons ici aux limites du modèle qui suppose la présence d'un diffuseur unique dans le volume observé par le système de détection. Cette hypothèse est d'autant plus simpliste étant donné que le champ du laser d'excitation n'est pas focalisé dans l'échantillon et illumine tous les diffuseurs présents dans le volume confocal. Cela peut expliquer les variations de la phase de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ d'une session de mesure à l'autre, où l'on peut à chaque fois privilégier certains diffuseurs par rapport à d'autres, selon les positions relatives d'un diffuseur, de la boîte quantique, de l'optique de collection.

De plus, ces diffuseurs peuvent avoir une réponse inélastique : le fond parasite ne sera donc plus parfaitement cohérent avec le laser et cela brouillera les franges d'interférences entre le signal de photoluminescence et le fond parasite. Cela expliquerait pourquoi le spectre de PLE résonnante présente un fond si important alors que le modèle qui fait l'hypothèse d'interférences avec 100% de visibilité prévoit des valeurs du fond bien plus faibles.

Ainsi, bien que ce modèle explique correctement certains comportements comme le groupement des photons qui apparaît à haute puissance sur les mesures de $g^{(2)}(\tau)$, il pourrait être amélioré en utilisant de multiples diffuseurs et de la relaxation dans le processus de diffusion parasite. Une solution pour le réaliser pourrait être, par exemple, de séparer la diffusion parasite en une partie cohérente et une partie incohérente, dont la somme serait reliée au fond parasite mesuré sur les spectres de PLE résonnante..

5.3 Mesures d'indiscernabilité en présence d'un fond laser parasite

Jusqu'à présent, nous avons utilisé le modèle avec le fond laser pour reproduire les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ et de $g^{(2)}(\tau)$, qui ne pouvaient pas toujours être expliquées sans ce fond parasite. Bien que nous ayons ajusté les mesures d'indiscernabilité du chapitre 4 de manière satisfaisante, nous avons dû pour cela utiliser des temps T_1 et T_2 de 0,3 et 0,52 ns, légèrement inférieurs à ceux estimés au chapitre 3, respectivement de 0,37 et 0,54 ns (cf. paragraphe 3.3.7, p. 101).

Le développement de l'expression de $g^{(2X)}(\tau)$ en présence d'un fond laser donne l'expression (4.2.16), que l'on rappelle ici :

$$g^{(2X)}(\tau) = \frac{1}{D} \left[TR(T^2 + R^2) g^{(2)}(\tau) + RT^3 g^{(2)}(\tau - \Delta t) + T_A R_A R_B^2 g^{(2)}(\tau + \Delta t) - 2R^2 T^2 V_0 |g^{(1)}(\tau)|^2 \right] \quad (5.3.1)$$

où $D = 2RT(R^2 + T^2)$, T et R étant les coefficients de transmission et de réflexion

des séparatrices de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel*, et V_0 le coefficient de visibilité des interférences à deux photons, prenant en compte les imperfections du montage, et éventuellement la configuration parallèle ou croisée de la polarisation entre les deux bras de l'interféromètre.

Dans cette section, $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ sont donnés par leurs expressions (3.2.12) et (3.3.17), qui prennent en compte le fond laser parasite. Nous chercherons donc à confronter ce modèle aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, et verrons que nous pouvons cette fois-ci obtenir des courbes théoriques reproduisant fidèlement les mesures, en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés indépendamment dans le chapitre 3. Nous allons donc reprendre les deux études menées dans le chapitre 4, où nous avons mesuré $g^{(2X)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation et en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation.

5.3.1 Étude en fonction de la puissance d'excitation

Nous répétons ici la même étude qu'au paragraphe 4.3.2 (p. 137). Les ajustements présentés sur la figure 5.6 utilisent le modèle développé dans ce chapitre, prenant en compte le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation. De manière similaire à ce qui était présenté sur la figure 4.16, chaque colonne correspond à un point de mesure, c'est-à-dire à une puissance d'excitation correspondant ici au paramètre de saturation s_0 . Pour chaque puissance d'excitation, on mesure $g^{(2X)}(\tau)$ en configuration de polarisation parallèle et croisée, et on trace la courbe de visibilité des interférences à deux photons.

Pour cette session de mesure, nous présentons ici les mesures de la plus haute puissance d'excitation ($s_0 = 4,4$, colonne de gauche) à la plus basse ($s_0 = 0,12$, colonne de droite). La première ligne correspond aux mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ avec la polarisation parallèle entre les deux bras de l'interféromètre — l'ajustement donne $V_0 = 97\%$. La deuxième ligne correspond au cas où les polarisations sont croisées ($V_0 = 20\%$). La troisième ligne donne les courbes de visibilité $V(\tau) = 1 - g_{\parallel}^{(2X)}(\tau)/g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$.

Les comportements observés en fonction de la puissance sont donc de même nature que ceux observés sur la figure 4.16 : à haute puissance, les oscillations très rapides de $g^{(2)}(\tau)$ rendent le creux de dégroupement très étroit et mal résolu par le système de détection, tandis qu'il est plus large et très bien résolu à basse puissance. Lorsque la puissance diminue, on observe de plus l'augmentation de la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux, du fait de la présence de plus en plus prononcée de la composante longue dont le temps caractéristique est le temps de cohérence du laser d'excitation.

* Pour simplifier, nous considérons que les coefficients de transmission et de réflexion sont les mêmes pour les deux séparatrices de l'interféromètre de Hong–Ou–Mandel, ce qui est le cas en réalité.

Les courbes théoriques en rouge continu sur la figure 5.6 utilisent le modèle de ce chapitre et prennent en compte le fond parasite. Elles ajustent de manière très satisfaisante les mesures, et on pourra noter qu'elles ont été tracées en utilisant les temps T_1 et T_2 déterminés de manière rigoureuse au chapitre 3.

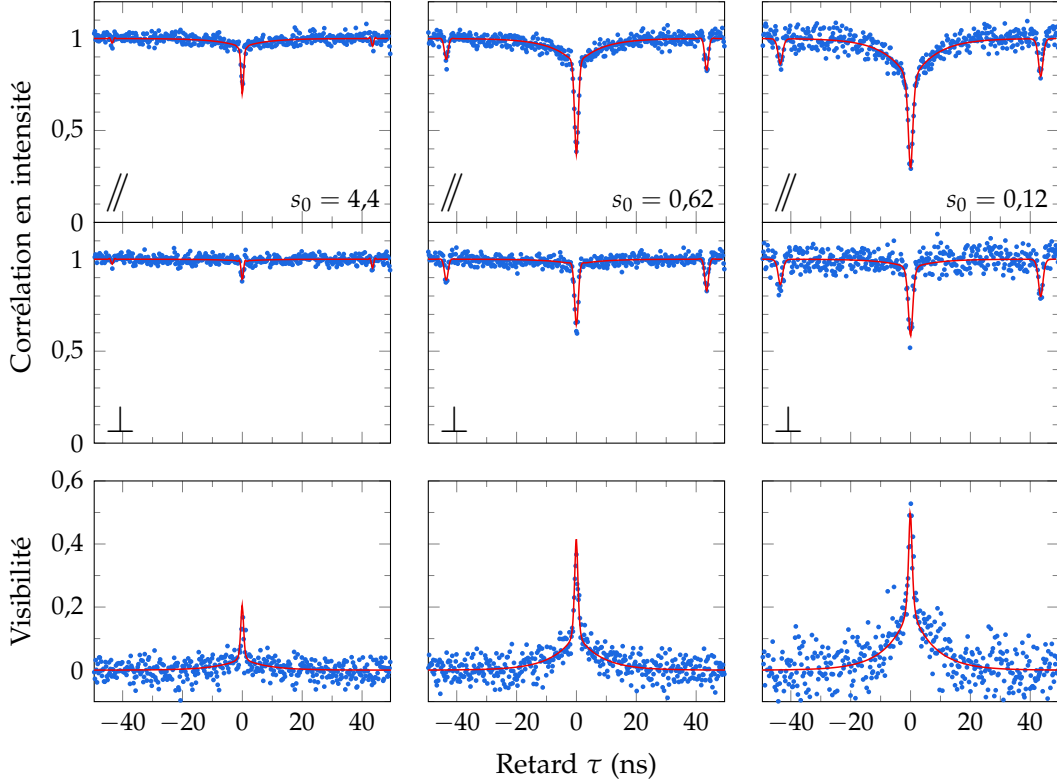


FIGURE 5.6 — Mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis en fonction de la puissance d'excitation, en prenant en compte le fond laser parasite. Il s'agit des mêmes mesures que celles présentées au chapitre 4.

Fenêtre temporelle de coalescence – confrontation à l'expérience

Observons maintenant l'effet de la prise en compte du fond parasite sur l'estimation de la fenêtre temporelle de coalescence. La figure 5.7 trace la FTC en fonction de la puissance d'excitation. Les points expérimentaux sont tirés des mesures de la figure 5.6 et la courbe verte pointillée est issue du meilleur ajustement sur les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ en l'absence de fond parasite, en utilisant $T_1 = 0,37$ ns et $T_2 = 0,54$ ns (valeurs établies au chapitre 3). La courbe rouge est le meilleur ajustement des mesures en ajoutant le fond parasite au modèle*.

* Sans fond parasite, la puissance de saturation obtenue par l'ajustement est 7% plus grande qu'avec le fond parasite et les paramètres de visibilité V_0 changent légèrement. Tous les autres paramètres sont rigoureusement identiques.

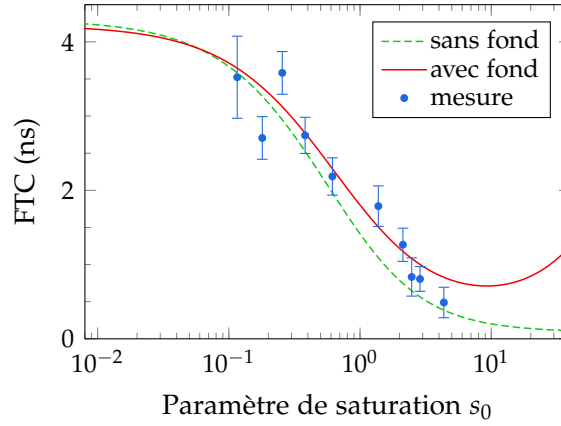


FIGURE 5.7 — Fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation avec et sans fond parasite.

Les deux courbes théoriques sont compatibles avec les points expérimentaux. En réalité, pour la plupart, leur bon accord avec la courbe théorique sans fond parasite est légèrement abusif et il convient de faire une comparaison plus détaillée, ce que nous allons faire au paragraphe suivant.

Comparaison détaillée des ajustements théoriques de $g^{(2X)}(\tau)$ avec et sans fond laser parasite

La figure 5.8 compare les ajustements de $g^{(2X)}(\tau)$ et des courbes de visibilité avec et sans le fond parasite, en se focalisant sur les retards τ faibles. Il faut prendre garde aux échelles qui sont ajustées pour chaque courbe de manière à mieux en distinguer les détails. Les courbes rouges continues correspondent à l'ajustement prenant en compte le fond parasite, tandis que les courbes vertes pointillées proviennent de l'ajustement sans fond parasite. Comme précédemment, chaque colonne correspond à une puissance d'excitation et chaque ligne à une grandeur différente, les deux premières étant les mesures de $g_{\parallel}^{(2X)}(\tau)$ et de $g_{\perp}^{(2X)}(\tau)$, la troisième étant la visibilité des interférences. La quatrième ligne donne l'écart entre la courbe de visibilité théorique et à la courbe expérimentale*.

Nous nous intéresserons à quelques cas particuliers de la figure 5.8, représentatifs d'un problème plus général. Tout d'abord, la mesure de $g^{(2X)}(\tau)$ pour $s_0 = 4,4$, en polarisation parallèle, pour laquelle l'ajustement sans fond est bien plus éloigné de la mesure que l'ajustement avec fond. En effet, le modèle sans fond prévoit une disparition complète de la composante longue due à la diffusion élastique par le système à deux niveaux. Or la mesure montre une composante longue résiduelle,

* Concrètement il s'agit de la différence des deux, lissée afin de mieux en distinguer les comportements d'ensemble.

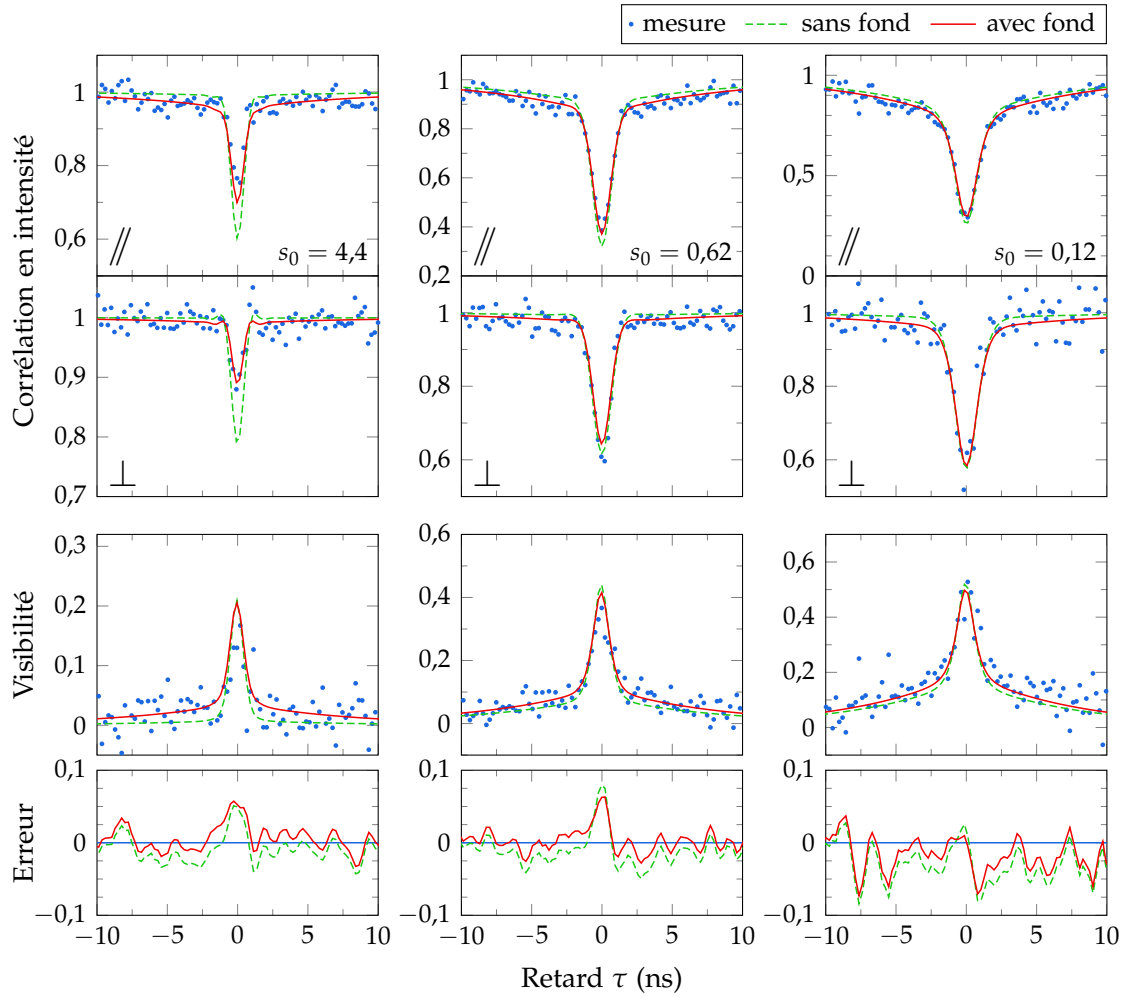


FIGURE 5.8 — Comparaison des ajustements avec et sans fond laser, en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés au chapitre 3. Les courbes d'erreur de la dernière ligne ont été lissées pour s'abstraire au mieux du bruit. Il faudra prendre garde aux échelles en ordonnée adaptées au cas par cas pour mieux distinguer les différences entre les courbes.

qui est expliquée ici par la présence d'un fond parasite. Cela est corroboré par l'ajustement avec le modèle prenant en compte le fond, qui concorde beaucoup mieux avec la mesure.

Ce défaut se retrouve sur la courbe de visibilité correspondante, où la courbe verte décroît beaucoup plus vite vers 0 lorsque τ augmente, et on le retrouve enfin dans la courbe d'erreur de la dernière ligne, où pour $|\tau| > 1$ ns, la courbe verte souffre d'un décalage constant, négatif, qui montre qu'elle sous-estime la visibilité sur cette gamme de τ , ce qui n'est pas le cas de la courbe rouge qui prend en compte le fond parasite et qui est mieux centrée sur 0. Pour $|\tau| < 1$ ns, en revanche, l'erreur est positive pour les deux courbes, ce qui signifie que les ajustements surestiment la

valeur de la visibilité.

Lorsque l'on calcule finalement la FTC, qui est l'aire de la courbe de visibilité, on obtient donc un résultat plus proche de la mesure pour l'ajustement sans fond (courbe verte pointillée), car les deux erreurs se compensent. Cela explique pourquoi le point correspondant sur la figure 5.7 (point à plus haute puissance) est plus proche de la courbe calculée avec le modèle sans fond qu'avec celle du modèle prenant le fond en compte.

Si l'on observe attentivement les ajustements aux autres puissances, ce comportement peut être retrouvé et montre que le modèle prenant en compte le fond réussit mieux à décrire le comportement de $g^{(2X)}(\tau)$. Toutefois, du fait des compensations d'erreur entre $|\tau| < 1$ ns et $|\tau| > 1$ ns, les deux modèles donnent des courbes théoriques de FTC satisfaisantes.

Fenêtre temporelle de coalescence – comportement théorique avec ou sans fond parasite

Si la figure 5.7 se limite à la zone explorée par les mesures de $g^{(2X)}(\tau)$, la figure 5.9 montre ce que prévoit le modèle à toutes les puissances lorsque l'on prend en compte le fond laser (courbe rouge continue) ou pas (courbe verte pointillée). Ces courbes ont été tracées dans les mêmes conditions que précédemment, et l'on peut décrire leur comportement en distinguant trois zones notées A, B et C. Les encarts montrent l'allure de la visibilité des interférences à deux photons à une puissance située dans chacune de ces zones, prenant en compte le fond laser.

- A :** à basse puissance, c'est-à-dire pour $s_0 \ll 1$, les deux courbes ont essentiellement le même comportement, ce qui montre que le fond laser est négligeable devant l'émission du système à deux niveaux. À très basse puissance, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.4.6 (p. 38), cette émission est essentiellement due à la diffusion élastique du laser d'excitation par le système à deux niveaux, dans la limite du rapport $\frac{T_2}{2T_1}$, ce qui explique l'allure de la courbe de visibilité où la composante large correspondant à la diffusion élastique du laser est forte et la composante étroite est due à la statistique de photons uniques de la source. Cette courbe ne dépendant plus de la puissance si celle-ci est suffisamment basse, cela donne un palier à 4,3 ns pour $s_0 \ll 1$.
- C :** à très haute puissance, c'est-à-dire pour $s_0 \gg 100$, les deux courbes tendent vers des valeurs radicalement différentes. Sans le fond laser, la FTC se stabilise à une valeur proche de 0 (en fait 80 ps)*, alors qu'elle tend vers 6,4 ns si l'on prend en compte le fond laser. On comprend que la FTC sans fond laser diminue,

* Il est difficile de vérifier cette valeur, qu'il n'est pas évident de mesurer expérimentalement. Le fait que la FTC ne tende pas rigoureusement vers 0 peut être dû à un biais numérique lié à la convolution par le système de détection.

l'émission résonnante n'étant plus due qu'à de la diffusion inélastique par le système à deux niveaux et les fonctions de corrélation $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ oscillant de plus en plus rapidement, et étant donc de moins en moins résolues par le système de détection. Lorsque l'on prend en compte le fond laser, celui-ci est dû à une diffusion élastique du laser d'excitation par un diffuseur linéaire idéal qui ne sature donc pas comme le système à deux niveaux. Comme nous l'avons vu au paragraphe 5.2.3, pour une puissance d'excitation suffisamment élevée ($s_0 \gg 1000$), le fond parasite devient donc complètement prépondérant sur l'émission du système à deux niveaux. Les photons détectés se comportent alors comme s'ils provenaient directement du laser d'excitation seul : comme on peut le voir sur la courbe de visibilité, le pic étroit dû à la statistique de photons uniques a disparu et le comportement est similaire à ce qui est décrit dans le paragraphe 4.2.6 (p. 132).

B : entre les régimes A et C, pour des puissances $1 < s_0 < 100$, le régime B correspond à la transition où la diffusion parasite du laser d'excitation prend peu à peu le pas sur l'émission du système à deux niveaux qui sature, avec un minimum correspondant au moment où l'influence de la diffusion parasite sur la FTC vainc celle du système à deux niveaux.

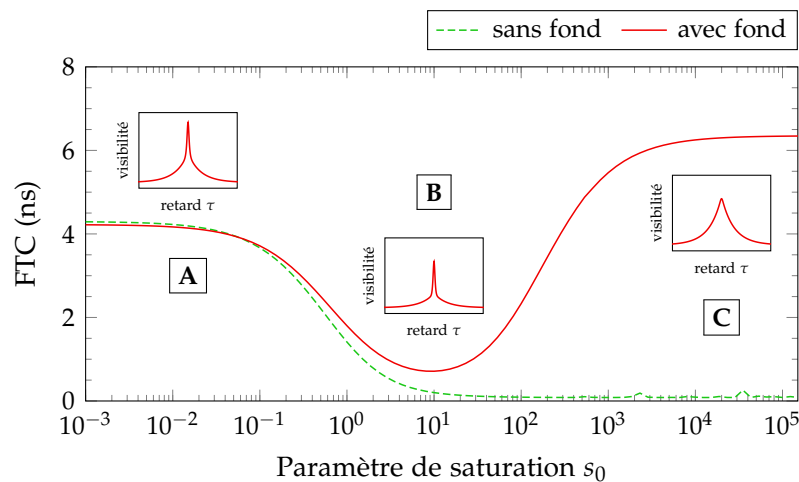


FIGURE 5.9 — Comportement théorique de la fenêtre temporelle de coalescence en fonction de la puissance d'excitation, avec la prise en compte ou pas du fond parasite.

Il serait donc intéressant d'explorer les très hautes puissances pour confirmer le comportement prévu par le modèle. Cela pourrait aussi fournir de solides preuves de la présence du fond laser parasite et permettre de l'évaluer précisément. Les niveaux de puissance impliqués sont toutefois susceptibles d'activer des comportements fortement non-linéaires et des processus multiples difficiles à identifier ; cela est d'autant plus vrai dans le cas où l'on excite le système en injectant le laser d'excitation par la tranche (ce qui est notre cas) et que tout l'échantillon est illuminé.

5.3.2 Étude en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation

De la même manière qu'au chapitre 4, intéressons-nous maintenant au comportement des mesures d'indiscernabilité en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation, avec une puissance d'excitation basse devant le niveau de saturation. Il s'agit de vérifier que le modèle prenant en compte le fond laser parasite permet d'ajuster les mesures tout en utilisant les temps T_1 et T_2 estimés rigoureusement au chapitre 3.

Sur la figure 5.10, on retrouve les mesures exposées au chapitre 4, ajustées en utilisant le nouveau modèle qui prend en compte le fond parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

On notera que, du fait que les courbes en configuration de polarisation croisée sont toutes identiques, elles ont été ajustées avec un fond laser nul et une visibilité des interférences $V_0 = 0$, ce qui retire toute dépendance de la fonction d'ajustement vis-à-vis de la cohérence du laser d'excitation*.

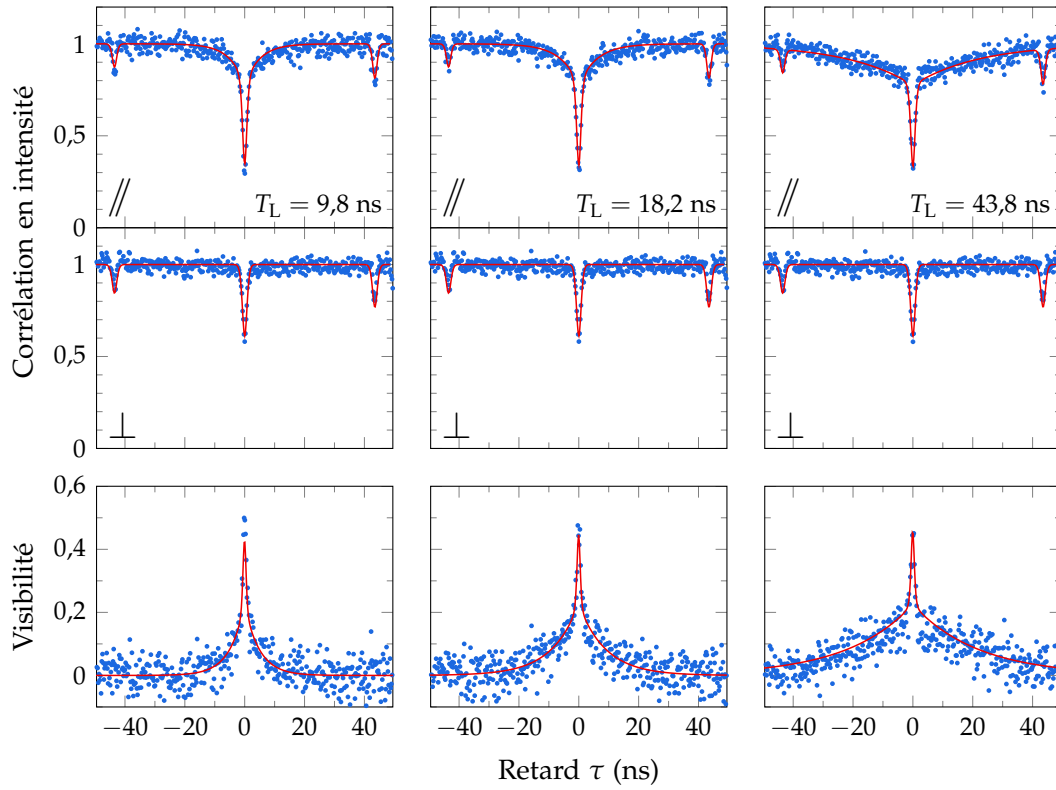


FIGURE 5.10 — Mesures de $g^{(2X)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis, en fonction du temps de cohérence du laser d'excitation, en prenant en compte le fond laser parasite.

La figure 5.11 montre l'évolution de la FTC en fonction du temps de cohérence du

* Avec ces paramètres, la fonction $g^{(2X)}(\tau)$ ne dépend que de $g^{(2)}(\tau)$, sans fond parasite, qui ne dépend pas lui-même du laser d'excitation.

laser, dans les conditions de la figure 5.10. Comme précédemment, la courbe rouge continue représente le modèle qui prend en compte le fond laser parasite alors que la courbe verte pointillée ne le prend pas en compte. On constate un bon accord entre les courbes théoriques et les points expérimentaux, à l'exception du point à $T_L = 43$ ns. Ce temps de cohérence ne vérifie pas la condition $\Delta t \gg T_C$ (où Δt est le retard introduit par l'interféromètre) requise par le modèle. Il est donc logique que ce point s'éloigne de la courbe théorique. De plus, comme l'intégration des mesures expérimentales se fait dans la limite de ~ 45 ns, une partie de la courbe de visibilité se trouve en dehors de cet intervalle. La valeur calculée de la FTC aura donc tendance à sous-estimer la valeur réelle si la mesure était effectuée dans de bonnes conditions.

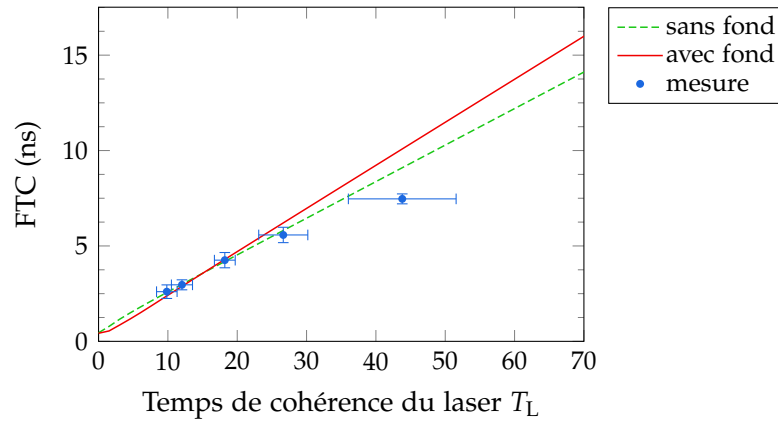


FIGURE 5.11 — Fenêtre temporelle de coalescence en fonction du temps de cohérence du laser T_L , à basse puissance d'excitation ($s_0 = 0,17$).

Conclusion du chapitre

Nous avons donc montré que l'ajout d'un fond parasite permet de reproduire avec justesse le comportement de $g^{(2)}(\tau)$ et de $g^{(2X)}(\tau)$. Nous retrouvons en particulier le groupement des photons perçus par le système de détection lors de la mesure de $g^{(2)}(\tau)$ à des puissances d'excitation de l'ordre de $s_0 = 100$. Ce phénomène est inexplicable à partir du seul modèle du système à deux niveaux, il s'agit d'interférences entre le champ de photoluminescence et le champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation.

Si l'amélioration peut sembler minime pour les mesures d'indiscernabilité ($g^{(2X)}(\tau)$) et surtout sur la fenêtre temporelle de coalescence, nous avons utilisé des temps caractéristiques identiques à ceux établis indépendamment au chapitre 3, et la FTC n'est pas le meilleur estimateur de la qualité des ajustements sur les courbes de corrélation. Rappelons que le modèle précédent nécessitait d'utiliser des temps légèrement modifiés, à l'extrémité des intervalles d'incertitude, pour permettre de reproduire les mesures.

Un régime à très haute puissance, pour lequel le fond parasite devient grand devant l'émission de photoluminescence, a également été décrit qualitativement. Son exploration pourrait établir précisément la part de laser parasite, mais reste difficile à atteindre expérimentalement car l'hypothèse de diffusion linéaire et élastique est assez contraignante.

En effet, ce modèle peut montrer ses limites. Du fait de la simplicité de l'hypothèse d'un diffuseur unique, des incohérences apparaissent entre les valeurs de fond laser estimées suivant la mesure effectuée, parfois même entre différentes sessions de la même mesure ; la différence peut être de plusieurs ordres de grandeur. Les hypothèses pourraient être plus réalistes en considérant de multiples diffuseurs. De plus, il serait intéressant d'étudier les mécanismes de diffusion : les autres niveaux de la boîte quantique et même le cristal du substrat sont autant de sources possibles de diffusion, qui peut être élastique, linéaire ou pas, en fonction de l'intensité lumineuse.

