

**Thèse de Doctorat de  
l'Université Pierre et Marie Curie**

Ecole Doctorale : Physique en Ile-de-France

**Spécialité : Physique**

Réalisée

à l'Institut des Nanosciences de Paris

**Boîte quantique en interaction avec son  
environnement : excitation résonante pour l'étude des  
processus de décohérence**

Présentée par

**Antoine Reigue**

Soutenue publiquement le 29 septembre 2017

devant le jury composé de :

M. GRANDJEAN Nicolas	École polytechnique fédérale de Lausanne	Rapporteur
Mme. ROBERT-PHILIP Isabelle	CNRS - Laboratoire Charles Coulomb	Rapporteuse
Mme. AUFFEVES Alexia	CNRS - Institut Néel	Examinatrice
M. BROWAEYS Antoine	CNRS - Laboratoire Charles Fabry	Examineur
M. VOISIN Christophe	Laboratoire Pierre Aigrain	Président du jury
M. HOSTEIN Richard	Institut des Nanosciences de Paris	Membre invité
Mme. VOLIOTIS Valia	Institut des Nanosciences de Paris	Directrice de Thèse



À Rémy, Adama, Shaoyo, Angelo assassinés pendant cette thèse,  
et à toutes les autres victimes de violences policières.



*Regardez les passer, eux, ce sont les sauvages  
Ils vont où leur désir le veut par dessus monts  
Et bois et mers et vents et loin des esclavages  
L'air qu'ils boivent ferait éclater vos poumons.*

”Les Oiseaux de Passages”, Georges Brassens

# Remerciements

Je tiens d'abord à remercier chaleureusement les deux personnes qui m'ont encadré tout au long de cette thèse, Valia Voliotis et Richard Hostein. Vous m'avez accompagné pendant mes tout premiers pas dans le monde de la recherche en me laissant travailler seul quand je le souhaitais, et sans jamais me refuser votre aide quand j'en avais besoin, je vous en suis très reconnaissant.

Je tiens également à exprimer toute ma gratitude à Nicolas Grandjean et Isabelle Robert-Philip pour avoir accepté d'être rapporteur et rapporteuse de mon manuscrit. Mes remerciements vont également à Alexia Auffeves, Antoine Browaey et Christophe Voisin pour avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Je voudrais aussi remercier Roger Grousson, parti à la retraite pendant ma première année de thèse, et Léonard Moniello, étudiant en thèse dans notre équipe pendant mon stage de M2, pour les longues heures passées dans le noir qui m'ont permis de m'approprier l'expérience.

Je fini mes remerciements concernant l'équipe par Fabian Lux, Azza, Florent Lemardelé et Hamdi el Hosary, qui ont réalisé des stages dans notre équipe et qui ont contribué, chacun-e-s à leur niveau, à l'avancement des projets en cours.

Merci à Monique Combescot d'avoir accepté de me prendre en stage pendant le semestre qui a précédé ma thèse. C'est sans aucun doute ce travail qui m'a donné confiance en moi et m'a permis de me lancer dans la modélisation de nos expériences.

Merci à Bruno Laburthe-Tolra et Laurent Vernac pour le stage que j'ai passé dans leur équipe au LPL l'année avant ma thèse. Votre grande rigueur expérimentale m'a été d'une grande utilité pour la suite.

Je souhaite remercier nos collaborateurs et collaboratrices qui ont permis la réalisation des travaux présentés dans ce manuscrit. Les membres du C2N, anciennement LPN, pour la fabrication des échantillons, merci à Aristide Lemaître, Anthony Martinez, Carmen Gomez Carbonell, Christian Ulysse, Kamel Merghem et Stéphane Guilet. Un grand merci aux théoriciens qui ont développé le modèle du couplage électron-phonon, Jake Iles-Smith, Dara McCutcheon et Jesper Mørk avec une pensée particulière pour Jake qui a systématiquement prit le temps de répondre à mes nombreuses questions. Merci aussi à Emanuel Baudin du LPA qui nous a été d'une grande aide au début de ma thèse en nous orientant vers le traitement non Markovien de l'interaction électron-phonon. Je finirai en remerciant Paola Atkinson et Rémy Braive pour la réalisation des échantillons de boîtes GaAs/AlGaAs sur lesquels j'ai aussi travaillé pendant ma thèse.

Je remercie toute l'équipe NANOST, et l'INSP en général, qui m'a accueilli pendant ma thèse, en particulier François Dubin pour les discussions toujours intéressantes et Benoit Eble incollable quand on a besoin d'une référence bibliographique. Un énorme merci à Mathieu Bernard pour l'ensemble de son travail et à Florent Margailan qui, entre autre, a toujours prit le temps de venir relocker le laser lorsque je devenais fou. Merci aux thésard-e-s, parti-e-s ou encore là, pour votre bonne humeur. Courage pour la fin !

Je tiens à remercier toutes les personnes sans qui ce travail n'aurait pas été possible, le service électronique, le service basses températures, le secrétariat et la gestion.

Ces trois ans de thèse ont aussi été l'occasion d'enseigner à la fac. À ce sujet je voudrais remercier Sophie Hameau pour la superbe organisation des cours dont elle été en charge et auxquels j'ai participé. Un grand merci aussi pour l'organisation des ateliers au moment de la fête de la science.

Je remercie aussi toutes les personnes dont on ne parle jamais mais sans qui l'université ne pourrait pas fonctionner, les préparateurs et préparatrices de TP, les personnels de l'administration, de l'entretien, du ménage, de la cantine...

Ces trois années de thèse ont également été l'occasion de s'amuser en dehors du cadre du laboratoire. Un gigantesque merci à mes colocs, Bruno, Camille, Camille, Marie, Marion, Nelly, Thibault et Tom, et à tous les invités de passage plus ou moins long Andreas, Angéline, Martin, Mirène et Peter pour la bonne humeur et les (très) nombreuses heures de belote, ping-pong ou fléchettes ! Un merci particulier à Nelly qui a supporté les moments de tension pendant la rédaction ou avant la soutenance. Merci à ma famille de s'être déplacée si nombreuse le jour de ma soutenance.

Enfin, je voudrais remercier tout ceux et toutes celles qui durant mon passage à Jussieu se sont mobilisé-e-s contre la casse du service publique de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche parce que comme le reste, le savoir est à tout-e-s. Ceux et celles qui ont dénoncé la mascarade qu'était la COP 21 qui regroupait les plus grands pollueurs de la planète. Ceux et celles qui, syndiqué-e-s ou non, cagoulé-e-s ou non, refusent la casse du code du travail, menée par des gouvernements qui se suivent et se ressemblent, au profit d'une minorité. Ceux et celles qui s'insurgent contre les violences faites en raison d'une couleur de peau, d'une origine, d'un genre, d'une orientation sexuelle... Bref, merci à ceux et celles qui ont pris acte que notre société est ignoble, et qui compte bien ne pas rester les bras croisés !

Je finirai par celui que je ne remercie pas, Jean Chambaz président de l'Université Pierre et Marie Curie, qui au beau milieu du mouvement de contestation contre la loi travail et alors que des étudiant-e-s voulaient se réunir pour discuter de leur avenir, a fait fermer l'université pour des raisons de "sécurité", méprisant ainsi les enseignant-e-s et étudiant-e-s ayant cours, TD, ou examen...



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>14</b>
<b>1 Boîte quantique semiconductrice en interaction avec la lumière</b>	<b>19</b>
1.1 Introduction	21
1.2 Structure électronique des boîtes quantiques	21
1.2.1 Structure de bande d'un semiconducteur massif	21
1.2.2 Confinement des porteurs : du massif aux boîtes quantiques	26
1.2.3 Paires électron-trou	33
1.2.4 Structure fine des états de paire électron-trou	35
1.2.5 États multi-chargés d'une boîte quantique	37
1.3 Boîte quantique en interaction avec la lumière	39
1.3.1 Hamiltonien d'interaction lumière-matière	39
1.3.2 Excitation laser d'un système à deux niveaux : approche semi-classique	42
1.3.3 Couplage à l'ensemble des modes du champ électromagnétique, temps de vie et largeur de raie	46
1.4 Conclusion	53
<b>2 Excitation résonante de boîtes uniques et dispositif expérimental</b>	<b>55</b>
2.1 Introduction	57
2.2 Excitation résonante : une étude propre se paie cher	57
2.2.1 Intérêts de l'excitation résonante	57
2.2.2 Difficultés de l'excitation résonante	59
2.2.3 Structure des échantillons	60
2.2.4 Montage expérimental pour l'excitation résonante de boîtes quantiques	66
2.2.5 Utilisation d'un laser non résonnant pour retrouver l'émission résonante	71
2.3 Caractérisation de l'émission d'une boîte quantique	72
2.3.1 Spectres de photoluminescence et oscillation de Rabi	72
2.3.2 Polarisation de l'émission d'une boîte quantique	73
2.3.3 Statistique d'émission	74
2.3.4 Mesure du temps de vie radiatif	76
2.3.5 Mesure du temps de cohérence	77
2.3.6 Mesure de l'indiscernabilité des photons émis	80
2.4 Conclusion	83

<b>3</b>	<b>Mesures d'indiscernabilité pour l'étude de l'interaction électron-phonon</b>	<b>85</b>
3.1	Introduction . . . . .	87
3.2	Boîte quantique en interaction avec son environnement . . . . .	88
3.2.1	Les différents processus d'interaction . . . . .	88
3.2.2	Interférences à un photon . . . . .	89
3.2.3	Interférences à deux photons . . . . .	91
3.2.4	Temps de cohérence et indiscernabilité . . . . .	98
3.2.5	Expériences en température pour l'étude de l'interaction électron-phonon . . . . .	102
3.3	Indiscernabilité et interaction électron-phonon . . . . .	103
3.3.1	Système considéré et hamiltonien . . . . .	104
3.3.2	Transformation polaron . . . . .	110
3.3.3	Évolution temporelle . . . . .	111
3.3.4	Spectre de luminescence et ailes phonons . . . . .	113
3.3.5	Calcul de l'indiscernabilité . . . . .	117
3.3.6	Comparaison aux données expérimentales . . . . .	118
3.4	Conclusion . . . . .	120
<b>4</b>	<b>Étude de l'interaction entre une boîte quantique et une mer de Fermi</b>	<b>123</b>
4.1	Introduction . . . . .	125
4.2	Contrôle de l'état de charge d'une boîte quantique . . . . .	126
4.2.1	Étude non résonante et identification des raies de luminescence . . . . .	126
4.2.2	Étude résonante du trio $X^-$ . . . . .	129
4.2.3	État de charge des boîtes quantiques étudiées . . . . .	130
4.2.4	Efficacité de l'émission . . . . .	136
4.3	Interaction avec la mer de Fermi . . . . .	139
4.3.1	Influence de la température sur l'émission de la luminescence résonante . . . . .	139
4.3.2	Évolution du temps de cohérence . . . . .	140
4.3.3	Piste pour une interprétation quantitative . . . . .	142
4.4	Quelques résultats sur l'apparition d'une deuxième raie de luminescence résonante . . . . .	144
4.4.1	Observation de battements dans les expériences de spectroscopie par transformée de Fourier . . . . .	144
4.4.2	Effet de la puissance d'excitation . . . . .	145
4.4.3	Effet de la tension appliquée . . . . .	147
4.4.4	Discussion . . . . .	148
4.5	Conclusion . . . . .	149
	<b>Conclusion</b>	<b>152</b>
	<b>Annexes</b>	<b>156</b>
	<b>A Les différentes formulations de la mécanique quantique</b>	<b>159</b>

---

<b>B</b>	<b>Équation maîtresse dans le formalisme de Lindblad</b>	<b>163</b>
<b>C</b>	<b>Fonctions de corrélation du champ électromagnétique</b>	<b>171</b>
<b>D</b>	<b>Champ émis par une boîte quantique</b>	<b>175</b>
<b>E</b>	<b>Théorème de Wiener-Khinchin</b>	<b>177</b>
<b>F</b>	<b>Théorème de la régression quantique</b>	<b>181</b>
<b>G</b>	<b>Couplage aux phonons et fonctions de corrélation</b>	<b>187</b>
<b>H</b>	<b>Transformation polaron</b>	<b>195</b>
<b>I</b>	<b>Formalisme de Lindblad pour le couplage quadratique aux phonons</b>	<b>199</b>
<b>J</b>	<b>Prise en compte du filtrage spectral de la cavité dans le calcul de l'indiscernabilité</b>	<b>201</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>209</b>



# Introduction



En 1981, Richard Feynman [1] propose d'utiliser les propriétés quantiques de la matière pour la réalisation de calculateurs dit *quantiques*, possédant des puissances de calcul bien plus grandes que les ordinateurs *classiques* que nous utilisons de nos jours. Son idée repose sur le fait de remplacer les bits classiques par des superpositions cohérentes d'états propres d'un système à deux niveaux, appelé *qubit* ou bit quantique. Ainsi, il est devenu particulièrement intéressant d'étudier des systèmes quantiques pour lesquels il est possible d'isoler et de manipuler deux niveaux d'énergie discrets. C'est par exemple le cas des atomes [2, 3], des ions piégés [4, 5, 6, 7], des jonctions Josephson [8, 9, 10], de deux polarisations orthogonales de photons [11, 12], des centres NV du diamant [13] ou des boîtes quantiques (BQ) semiconductrices [14, 15]. En s'appuyant sur l'idée de Feynman, Peter Shor [16] propose en 1995 le premier algorithme de calcul quantique, permettant la factorisation de grands nombres, tâche particulièrement difficile à réaliser pour un ordinateur classique. L'implémentation de cet algorithme a été réalisée en 2001 [17], en utilisant un ordinateur de sept qubits, permettant la factorisation du nombre 15, la difficulté d'une telle réalisation venant de la nécessité d'intriquer entre eux les qubits [18].

À ce jour, l'augmentation constante du nombre de qubits intriqués en utilisant des systèmes tels que les ions [19] ou les qubits supraconducteurs [20], en fait les systèmes les plus aptes à être utilisés pour des applications en informatique quantique. Cependant, les photons apparaissent comme le moyen le plus naturel de connecter ces différents qubits entre eux. En effet, la transmission rapide de l'information et la faible interaction des photons avec leur environnement en font des systèmes particulièrement intéressants. Néanmoins, pour de telles applications, ces photons doivent être produits un par un et de manière déterministe. De plus, afin de permettre leur intrication nécessaire à certains protocoles, ces photons doivent être indiscernables c'est-à-dire avoir le même profil spectral, la même polarisation, le même profil temporel et être dans le même mode spatial.

Dans ce manuscrit nous nous intéressons aux BQ auto-organisées InAs/GaAs, réalisées par épitaxie par jets moléculaires [21] au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N). Dans de telles structures, le confinement des porteurs sur des dimensions nanométriques et dans les trois directions de l'espace, entraîne la quantification des niveaux électroniques et conduit à la discrétisation du spectre d'émission à basse température, de manière similaire aux atomes [22, 23]. La première observation de ce phénomène a été réalisée dans les années 1990 par microphotoluminescence sur boîte unique [24], et il a fallu attendre les années 2000 pour qu'il soit mis en évidence que les BQ sont des sources de photons uniques [25, 26, 27] et indiscernables [28]. Contrairement aux atomes ou aux ions qui peuvent posséder les mêmes propriétés d'émission [2, 29, 30, 31], les BQ ont l'avantage de pouvoir être intégrées dans des composants électroniques ou photoniques [32, 33], et peuvent ainsi constituer des blocs élémentaires pour des applications en informatique quantique. Cependant, les BQ constituent par nature un système ouvert qui interagit fortement avec son environnement : la matrice solide environnante. Ces interactions détruisent les propriétés de cohérence des photons émis. C'est la raison pour laquelle l'excitation résonante [34], où l'excitation optique a exactement la même énergie que la transition étudiée, a rapidement constitué une condition indispensable pour la préservation des propriétés de cohérence des photons émis. Malgré cette amélioration, les processus de décohérence dus à l'interaction avec l'environnement constituent la principale limitation à l'heure actuelle pour l'utilisation des BQ dans la réalisation de dispositifs

en information quantique. En revanche, ils permettent l'étude de l'interaction entre un système modèle (une BQ considérée comme un système à deux niveaux) et son environnement : les vibrations du réseau cristallin [35, 36], l'environnement électrostatique fluctuant [37, 38, 39] ou les spins nucléaires [40, 41].

L'équipe dans laquelle j'ai effectué ma thèse a été l'une des premières à réaliser en 2008 l'excitation résonante de BQ uniques [42] en régime pulsé. Pour ce faire, les BQ sont insérées dans des guides d'onde unidimensionnels permettant de découpler spatialement l'excitation laser et la luminescence résonante des boîtes. Cela a permis de démontrer qu'il était possible de créer et manipuler optiquement à l'aide d'impulsions picosecondes un qubit dans une BQ unique [43]. Les oscillations de Rabi et les expériences de contrôle cohérent ont également mis en évidence que l'interaction avec les phonons est responsable d'une perte de cohérence sur des temps de l'ordre de quelques centaines de picosecondes [44]. Plus récemment, Monniello *et al* [45] ont montré que les BQ constituent une bonne source de photons uniques et indiscernables en utilisant un montage de type Hong-Ou-Mandel (HOM) où deux photons émis successivement par une BQ interfèrent sur une lame semi-réfléchissante.

À la suite de ces travaux, nous nous sommes intéressés aux différents processus de déphasage responsables de la perte de cohérence des photons émis par une BQ sous excitation résonante. Nous avons montré que des expériences à deux photons dans un montage de type HOM ne sondent que les processus d'interaction entre la BQ et les phonons acoustiques, et mis en évidence que ces processus sont dus à des transitions réelles et virtuelles assistées par phonons. Afin d'être en mesure de réaliser ces expériences, le choix a été fait de changer de cryostat afin de permettre une plus grande stabilité du système expérimental. J'ai donc reconstruit l'expérience en montant les objectifs d'excitation et de détection de la luminescence dans un nouveau cryostat à circuit fermé, permettant la réalisation d'expériences longues avec une grande stabilité. Durant la dernière année, j'ai étudié des échantillons contactés électriquement permettant d'appliquer un champ électrique dans la direction de croissance des BQ. Nous avons montré qu'il est alors possible de contrôler de manière déterministe l'état de charge d'une boîte et ainsi observer de manière systématique et très efficace la luminescence sous excitation résonante, contrairement à la première génération d'échantillons où la luminescence résonante n'était observée que sur environ 10% des BQ.

Ce manuscrit se divise en 4 chapitres. Dans le premier d'entre eux nous nous intéressons à la structure électronique des BQ, en montrant que le confinement des porteurs dans les trois directions de l'espace a pour conséquence la quantification des niveaux d'énergie, entraînant une discrétisation du spectre d'émission à basse température. Dans un deuxième temps, nous étudions l'interaction entre une BQ modélisée par un système à deux niveaux et une excitation laser monomode décrite classiquement, qui conduit aux célèbres oscillations de Rabi, permettant en régime pulsé un contrôle déterministe de l'état de la boîte. Enfin, nous finissons ce chapitre en considérant un système à deux niveaux initialement dans son état excité couplé à l'ensemble des modes du champ électromagnétique. Nous montrons que cette interaction est responsable de l'existence d'un temps de vie fini de l'état excité ainsi que de la forme lorentzienne de la raie de luminescence.

Le deuxième chapitre commence par présenter les intérêts de l'excitation résonante ainsi que les difficultés liées à sa réalisation expérimentale. Nous décrivons ensuite les échantillons étudiés et le

montage optique utilisé pendant cette thèse. Pour finir, nous présentons les différentes techniques expérimentales nous permettant de caractériser la luminescence émise par une BQ : étude de la polarisation, mesure de la statistique d'émission, mesure du temps de vie et du temps de cohérence et enfin caractérisation de l'indiscernabilité des photons émis.

Le troisième chapitre constitue le cœur du travail présenté dans ce manuscrit. Nous mettons en évidence que les expériences d'interférences à deux photons ne sont sensibles qu'à l'interaction de la BQ étudiée avec les vibrations du réseau cristallin, lorsque les photons sont émis avec un délai de l'ordre de la nanoseconde. Afin de sonder cette interaction avec les phonons, nous présentons les résultats des mesures d'indiscernabilité lorsque la température de l'échantillon varie. Dans une deuxième partie, nous détaillons le modèle microscopique développé nous permettant d'obtenir une expression analytique de l'indiscernabilité des photons émis en fonction de la température. Nous identifions deux mécanismes distincts responsables de la perte de la visibilité. Des transitions réelles assistées par phonons, à l'origine d'une luminescence très large spectralement, communément appelée "ailes phonons" et noté dans la suite PSB (pour *phonon side band* en anglais). Des transitions virtuelles assistées par phonons, dues à la présence d'états excités de plus haute énergie dans la boîte et à l'origine d'un élargissement de la raie zéro phonon notée ZPL (pour *zero phonon line* en anglais).

Pour finir, le quatrième chapitre est consacré à l'étude d'un échantillon contacté électriquement nous permettant d'appliquer un champ électrique dans la direction de croissance des BQ. Nous montrons que la structure originale de cet échantillon permet l'observation systématique et efficace de la luminescence résonante pour la transition correspondant à la recombinaison radiative de la paire électron-trou chargée négativement. Nous interprétons cet effet comme dû à la présence d'une mer de Fermi à proximité du plan de BQ, permettant grâce au passage par effet tunnel des électrons, le contrôle déterministe de l'état de charge des BQ. De plus, nous présentons des mesures de l'intensité émise en fonction de la tension et de la température ainsi que des mesures du temps de cohérence par spectroscopie par transformée de Fourier (STF). Nous discutons qualitativement ces résultats à la lumière de ceux présentés en début de chapitre en considérant l'interaction avec la mer de Fermi. Nous proposons enfin une piste pour une interprétation quantitative en utilisant le modèle d'Anderson qui prend en compte l'échange de porteurs par effet tunnel entre un petit système (ici une BQ) et un réservoir (la mer de Fermi).



## Chapitre 1

# Boîte quantique semiconductrice en interaction avec la lumière

---

**Sommaire**


---

<b>1.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>21</b>
<b>1.2</b>	<b>Structure électronique des boîtes quantiques</b>	<b>21</b>
1.2.1	Structure de bande d'un semiconducteur massif	21
1.2.1.1	Existence de bandes d'énergie interdites	21
1.2.1.2	Bandes de valence et de conduction	22
1.2.1.3	Méthode $\mathbf{k.p}$	23
1.2.1.4	Concept de trou	25
1.2.2	Confinement des porteurs : du massif aux boîtes quantiques	26
1.2.2.1	Idée générale	26
1.2.2.2	Puits quantique	27
1.2.2.3	Boîte quantique	29
1.2.2.4	Croissance épitaxiale de boîtes quantiques	31
1.2.3	Paires électron-trou	33
1.2.3.1	Paire électron-trou en interaction dans un semiconducteur massif	33
1.2.3.2	Paire électron-trou en interaction dans des structures confinées	34
1.2.4	Structure fine des états de paire électron-trou	35
1.2.5	États multi-chargés d'une boîte quantique	37
1.2.5.1	Trio	37
1.2.5.2	Double paire électron-trou	38
<b>1.3</b>	<b>Boîte quantique en interaction avec la lumière</b>	<b>39</b>
1.3.1	Hamiltonien d'interaction lumière-matière	39
1.3.1.1	Forme générale	39
1.3.1.2	Jauge de Coulomb	40
1.3.1.3	Jauge de Göppert-Mayer et approximation des grandes longueurs d'ondes	41
1.3.2	Excitation laser d'un système à deux niveaux : approche semi-classique	42
1.3.2.1	Hamiltonien et approximation de l'onde tournante	42
1.3.2.2	Équation maîtresse et équations de Bloch optiques	43
1.3.2.3	Oscillation de Rabi	45
1.3.3	Couplage à l'ensemble des modes du champ électromagnétique, temps de vie et largeur de raie	46
1.3.3.1	Hamiltonien	47
1.3.3.2	Utilisation du formalisme de Lindblad	48
1.3.3.3	Équation maîtresse en représentation interaction	49
1.3.3.4	Équation maîtresse en représentation Schrödinger	50
1.3.3.5	Temps de vie de l'état excité	50
1.3.3.6	Profil Lorentzien des raies d'émission	51
1.3.3.7	Temps de cohérence d'un système à deux niveaux	52
<b>1.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>53</b>

---

## 1.1 Introduction

Dans ce chapitre introductif, nous donnons les bases théoriques à l'interprétation des expériences présentées dans la suite de ce manuscrit. La première partie présente la structure électronique de différentes nano-structures semiconductrices, du semiconducteur massif aux boîtes quantiques (BQ). Nous mettrons en évidence l'intérêt de confiner les porteurs dans les trois directions de l'espace et nous introduirons la notion de paire électron-trou dans une BQ. Par la suite, nous nous intéresserons au couplage entre une BQ et la lumière dans le cas d'une excitation optique résonante. Une BQ sera modélisée par un système à deux niveaux dont nous montrerons dans un premier temps que son interaction avec un champ laser monomode (traité classiquement) en régime impulsif, permet de contrôler de manière déterministe l'état du système. Dans un deuxième temps, nous considérerons l'interaction entre un système à deux niveaux initialement dans son état excité et l'ensemble des modes du champ électromagnétique. Nous montrerons que ce couplage est responsable de l'existence d'un temps de vie fini de l'état excité. Pour finir, nous verrons que ce couplage est aussi responsable de la forme lorentzienne des raies de luminescence ainsi que de l'existence d'un temps de cohérence pour les photons émis.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous prendrons le temps de détailler le cadre théorique utilisé, puisque le formalisme développé ici sera utilisé de manière similaire dans le chapitre 3, lors de l'interprétation des mesures d'indiscernabilité des photons émis par une BQ.

## 1.2 Structure électronique des boîtes quantiques

Dans cette partie nous nous proposons de discuter la structure électronique des BQ qui seront étudiées dans la suite de ce manuscrit. Avant de considérer les cas où les électrons sont confinés dans les trois directions de l'espace, nous commençons par nous intéresser à la structure de bande d'un semiconducteur massif (ou *bulk* en anglais), c'est-à-dire lorsque les électrons sont libres de leur mouvement dans les trois directions de l'espace. Enfin, nous étudierons les états excités d'une BQ en introduisant la notion de *trou*, puis de *paire électron-trou*.

### 1.2.1 Structure de bande d'un semiconducteur massif

#### 1.2.1.1 Existence de bandes d'énergie interdites

Nous allons mettre en évidence dans cette partie l'existence de bandes d'énergies interdites pour des électrons (sans interaction) présents dans un réseau cristallin. Considérons un cristal à trois dimensions de volume  $L^3$  et intéressons nous à la relation de dispersion pour  $N$  électrons indépendants présents dans le cristal. Ces électrons sont soumis à un potentiel périodique  $U$  tel que  $U(\mathbf{r}) = U(\mathbf{r} + \mathbf{R})$  où  $\mathbf{r}$  est un vecteur quelconque de l'espace direct et  $\mathbf{R}$  un vecteur du réseau de Bravais du cristal. Le hamiltonien de  $N$  électrons s'écrit en première quantification

$$\hat{H}_{\text{tot}} = \sum_{n=1}^N \left( \frac{\hat{\mathbf{p}}_n^2}{2m_0} + U(\hat{\mathbf{r}}_n) \right), \quad (1.2.1)$$

où  $m_0$  est la masse d'un électron libre. Comme ces électrons sont supposés sans interaction, nous pouvons résoudre simplement le problème à un corps avec  $\hat{H} = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_0} + U(\hat{\mathbf{r}})$ . La forme des fonctions

propres de  $H$  est donné par le théorème de Bloch,

$$\Psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \frac{e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}}{L^{3/2}} u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (1.2.2)$$

où  $\mathbf{k}$  est un vecteur de Bloch dans l'espace réciproque quantifié en  $2\pi/L$  et  $u_{\mathbf{k}}$  est une fonction qui a la périodicité du cristal  $u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r} + \mathbf{R}) = u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  pour tout vecteur  $\mathbf{R}$  du réseau de Bravais. L'équation aux valeurs propres  $\hat{H}\Psi_{\mathbf{k}} = E_{\mathbf{k}}\Psi_{\mathbf{k}}$  devient alors

$$\hat{h}_{\mathbf{k}}u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = E_{\mathbf{k}}u_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}), \quad (1.2.3)$$

où

$$\hat{h}_{\mathbf{k}} = \frac{\hbar^2}{2m_0} \left( \mathbf{k} - i\hat{\nabla} \right)^2 + U(\hat{\mathbf{r}}). \quad (1.2.4)$$

Comme  $u_{\mathbf{k}}$  est une fonction périodique, sa connaissance sur une période, c'est-à-dire sur une maille élémentaire du cristal, la détermine complètement. De plus, les conditions aux limites périodiques de Born-Van Karman imposent des conditions aux limites bien précises pour la résolution de l'équation aux valeurs propres (1.2.3) sur une maille élémentaire. Donc pour  $\mathbf{k}$  fixé, la situation est similaire à celle du puits (fini ou infini) entraînant un spectre de valeurs propres discret. Les énergies propres sont donc de la forme  $E_{n,\mathbf{k}}$  avec  $n \in \mathbb{N}$  et l'équation aux valeurs propres (1.2.3) devient :

$$\hat{h}_{\mathbf{k}}u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = E_{n,\mathbf{k}}u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}). \quad (1.2.5)$$

Lorsque  $\mathbf{k}$  varie, la relation de dispersion  $E_{n,\mathbf{k}}$  fait apparaître des bandes d'énergie interdites pour les électrons du cristal.

### 1.2.1.2 Bandes de valence et de conduction

Nous venons de voir que la périodicité du réseau cristallin entraîne l'apparition de bandes d'énergie interdites pour les électrons. Dans un semiconducteur ou un isolant, la dernière bande occupée dénommée bande de valence est pleine, alors que la bande suivante, appelée bande de conduction, est vide. Ces deux bandes sont séparées par un écart en énergie (*gap* en anglais) qui dépend des atomes composant le réseau cristallin et qui peut être "direct" ou "indirect"<sup>1</sup>. Nous nous intéresserons dans la suite de ce manuscrit à des échantillons à base d'arséniure de gallium (GaAs, structure blende de zinc) et d'arséniure d'indium (InAs, structure blende de zinc) dont nous donnons dans la Table 1.1 les énergies des gaps à température ambiante et à température nulle. Le passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction correspond aux excitations inter-bande de plus basse énergie et les valeurs de la Table 1.1 montrent qu'elles correspondent à des excitations optiques dans le visible et le proche infra-rouge. Dans la suite, nous ne nous intéresserons qu'à des transitions entre bande de valence et bande de conduction, les structures électroniques de ces deux bandes étant présentées dans la suite.

Les structures semiconductrices que nous considérerons ici, ont une bande de valence dont la partie orbitale possède une symétrie  $L = 1$  (état  $p$ ) et une bande de conduction une symétrie  $L = 0$

---

1. Nous parlons de semiconducteur à gap direct lorsque le vecteur d'onde correspondant au maximum de la bande de valence coïncide avec celui correspondant au minimum de la bande de conduction.

	$T = 300 \text{ K}$	$T = 0 \text{ K}$
$E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}} \text{ (eV)}$	1.43	1.52
$E_{\text{gap}}^{\text{InAs}} \text{ (eV)}$	0.36	0.43

TABLE 1.1 – Valeurs des gaps pour les semiconducteurs GaAs et InAs à température ambiante et nulle [46].

(état  $s$ ) [47, 48]. Ces symétries nous renseignent sur le degré de dégénérescence orbitale ainsi que sur les états quantiques des électrons issus de ces bandes. Une manière de comprendre ce résultat est de noter que les fonctions d'onde du réseau cristallin sont issues du recouvrement des fonctions d'onde des atomes individuels qui le constituent. Cette méthode, dite LCAO pour Linear Combination of Atomic Orbitals, consiste à chercher la fonction d'onde moléculaire comme combinaison linéaire des fonctions d'onde atomiques. Comme pour les trois atomes Ga, As et In, le dernier niveau électronique plein est de symétrie  $p$  et le premier vide de symétrie  $s$  (la configuration du Gallium par exemple étant  $[\text{Ar}]4s^23d^{10}4p^1$ ), nous retrouvons ces symétries dans les orbitales moléculaires créées à partir de ces atomes. Nous en concluons que la bande de valence est dégénérée trois fois et que la bande de conduction ne l'est pas, si nous ne considérons pas le spin des électrons. En prenant en compte leur spin  $S = 1/2$ , les électrons de la bande de conduction, de moment cinétique orbital  $L = 0$ , possèdent un moment cinétique total  $J = L + S = 1/2$  avec les deux projections possibles selon un axe de quantification arbitraire,  $m_j = \pm 1/2$ . Ceux de la bande de valence, de moment cinétique orbital  $L = 1$ , possèdent un moment cinétique total  $J = 3/2$  pour les deux bandes dénommées  $\Gamma_8$  (voir Figure 1.1) avec les quatre projections possibles  $m_j = \pm 3/2; \pm 1/2$ , ou un moment cinétique total  $J = 1/2$  pour la bande dénommée  $\Gamma_7$  avec les deux projections possibles  $m_j = \pm 1/2$ . Pour la bande de valence, l'axe de quantification est donné par la direction de croissance des BQ (voir partie 1.2.2.4) puisque c'est la direction dans laquelle les porteurs sont le plus confinés.

La prise en compte du couplage spin-orbite a pour effet le rejet de la bande  $\Gamma_7$  correspondant au moment cinétique total  $J = 1/2$  [47, 48]. Cette bande, à laquelle nous ferons maintenant référence sous le nom de bande de split-off, se retrouve alors à plus basse énergie que les bandes  $\Gamma_8$  de 0.34 eV pour GaAs et de 0.38 eV pour InAs. Il est alors possible de sélectionner expérimentalement les transitions optiques de plus basses énergies, et nous ne tiendrons plus compte de la présence de la bande de split-off dans la suite.

### 1.2.1.3 Méthode $\mathbf{k.p}$

Pour déterminer de manière quantitative la structure de bandes d'un semiconducteur, nous devons résoudre l'équation aux valeurs propres (1.2.5) afin d'obtenir les expressions des énergies  $E_{n,\mathbf{k}}$ . La résolution de cette équation est en général compliquée et nous ne nous y intéresserons pas, même si des méthodes telles que celle du pseudo-potentiel ont permis dans les années 1960 de calculer les structures de bande de GaAs et de InAs [49] (voir Figure 1.1 (a)). Dans le travail présenté dans ce manuscrit, nous étudions les transitions électroniques liées à l'absorption ou à l'émission d'un photon visible ou dans le proche infra-rouge. La conservation de l'énergie impose

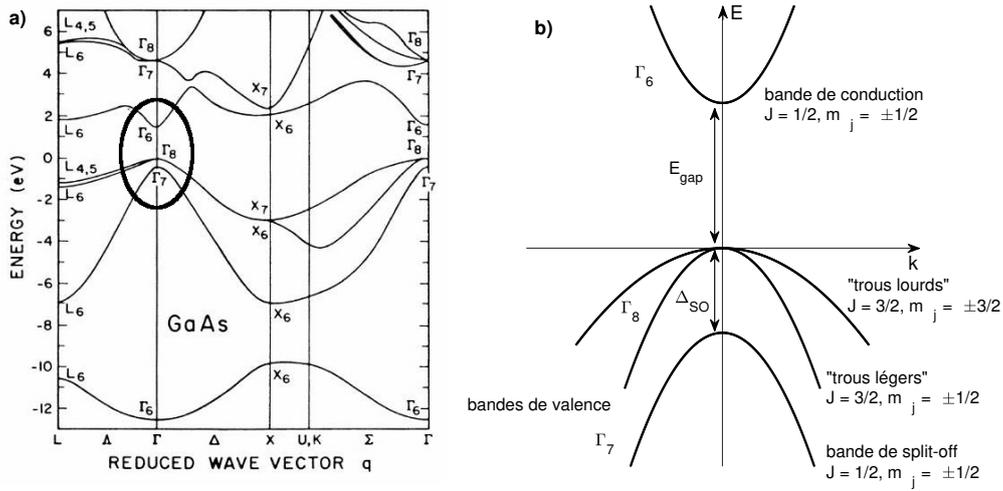


FIGURE 1.1 – (a) Structure de bandes de GaAs calculée par la méthode du pseudo-potentiel [50]. (b) Structure de bandes d'un semiconducteur massif à gap direct (type GaAs ou InAs) autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ .  $\Gamma_6$ ,  $\Gamma_7$  et  $\Gamma_8$  sont les représentations irréductibles des groupes de symétries en théorie des groupes. Un trou correspond à l'absence d'un électron de valence et ce concept sera introduit plus précisément dans la partie suivante.

alors que le vecteur d'onde de l'électron auquel nous nous intéressons reste petit devant la taille de la première zone de Brillouin. L'idée de la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  consiste alors à séparer le Hamiltonien  $\hat{h}_{\mathbf{k}}$  défini Eq. (1.2.4) en deux termes, un en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  et un en  $\mathbf{k} \neq \mathbf{0}$ , puis à traiter ce deuxième terme en perturbation.

En utilisant l'expression de l'opérateur impulsion  $\mathbf{p} = -i\hbar\nabla$ , nous pouvons réécrire  $\hat{h}_{\mathbf{k}}$  donné par l'Eq. (1.2.4) sous la forme  $\hat{h}_{\mathbf{k}} = \hat{h}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) + \hat{W}(\mathbf{k})$  où

$$\hat{h}(\mathbf{k} = \mathbf{0}) = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m_0} + U(\hat{\mathbf{r}}), \quad (1.2.6)$$

$$\hat{W}(\mathbf{k}) = \frac{\hbar}{m_0} \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_0}. \quad (1.2.7)$$

Pour une bande d'indice  $n$  non dégénérée en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ , la théorie des perturbations non-dégénérées donne

$$\begin{aligned} E_{n,\mathbf{k}} &= E_{n,\mathbf{0}} + \langle u_{n,\mathbf{0}} | \hat{W}(\mathbf{k}) | u_{n,\mathbf{0}} \rangle + \sum_{l \neq n} \frac{|\langle u_{n,\mathbf{0}} | \hat{W}(\mathbf{k}) | u_{l,\mathbf{0}} \rangle|^2}{E_{n,\mathbf{0}} - E_{l,\mathbf{0}}} \\ &= E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_0} + \frac{\hbar^2}{m_0^2} \sum_{l \neq n} \frac{|\langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}} | u_{l,\mathbf{0}} \rangle|^2}{E_{n,\mathbf{0}} - E_{l,\mathbf{0}}}, \end{aligned} \quad (1.2.8)$$

où  $E_{n,\mathbf{0}}$  est l'énergie propre de  $\hat{h}(\mathbf{k} = \mathbf{0})$  pour le vecteur propre  $|u_{n,\mathbf{0}}\rangle$  et où nous avons utilisé le fait que  $\langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}} | u_{n,\mathbf{0}} \rangle = 0$  puisque l'opérateur  $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar\nabla$  change la parité de la fonction d'onde (qui est de parité donnée) sur laquelle nous l'appliquons. Nous pouvons alors définir la masse effective  $m_n^*$  d'une bande  $n$  non dégénérée en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  comme

$$\frac{1}{m_n^*} = \frac{1}{m_0} + \frac{2}{m_0} \sum_{l \neq n} \frac{|\langle u_{n,\mathbf{0}} | \mathbf{k} \cdot \hat{\mathbf{p}} | u_{l,\mathbf{0}} \rangle|^2}{\mathbf{k}^2 (E_{n,\mathbf{0}} - E_{l,\mathbf{0}})}. \quad (1.2.9)$$

Les énergies propres autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  ont donc une relation de dispersion parabolique donnée par

$$E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_n^*}, \quad (1.2.10)$$

qui met en évidence le fait que l'interaction de la bande considérée avec les autres bandes a pour effet de modifier sa courbure.

Si nous nous plaçons maintenant dans le cas de bandes dégénérées en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ , ce qui est le cas des bandes  $\Gamma_8$ , la méthode décrite précédemment ne peut pas être appliquée puisque l'un des termes de la somme sur  $l$  dans l'équation 1.2.9 diverge. Il est alors nécessaire d'utiliser la théorie des perturbation dégénérées qui consiste à traiter de façon exacte les interactions entre les états propres dégénérés (ceux dont on veut connaître les nouvelles énergies propres) et à traiter perturbativement leurs interactions avec les autres états propres. Ce calcul peut être trouvé dans les références [47, 48], le résultat étant qu'ici aussi nous obtenons autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  une forme parabolique de l'énergie.

La Table 1.2 donne les valeurs des masses effectives pour des électrons de la bande de conduction et pour ceux des bandes de valence  $\Gamma_8$  de GaAs. Nous définirons dans la partie suivante, la notion de *trou* dans la bande de valence qui correspond à l'absence d'un électron et qui correspond à une particule de masse et de charge positive.

Particule	masse effective
bande de conduction	0.067 $m_0$
bande de valence $m_j = \pm 3/2$	-0.38 $m_0$
bande de valence $m_j = \pm 1/2$	-0.086 $m_0$

TABLE 1.2 – *Masses effectives des porteurs dans GaAs,  $m_0 = 9.11 \times 10^{-31}$  kg étant la masse de l'électron libre.*

Nous venons de voir le résultat suivant : des électrons sans interaction dans le potentiel périodique des ions du réseau cristallin peuvent être décrits comme des électrons libres au prix d'une renormalisation de leur masse. Nous verrons dans la suite que ce résultat fondamental nous permet de décrire simplement les structures électroniques de systèmes confinés tels que les BQ. La Figure 1.1 (b) montre la structure de bande d'un semiconducteur massif à gap direct (type GaAs ou InAs) au voisinage de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ .

#### 1.2.1.4 Concept de trou

Un semiconducteur dans son état fondamental à température nulle possède  $N$  électrons dans la bande de valence et une bande de conduction totalement vide, comme représenté Figure 1.2 (a). Exciter ce semiconducteur correspond au passage d'un électron de la bande de valence à la bande de conduction et il est alors nécessaire de traiter un problème à  $N$  corps : 1 électron dans la bande de conduction en interaction avec  $N - 1$  électrons de la bande de valence. Ce problème étant particulièrement compliqué, il est utile d'introduire le concept de *trou* qui consiste à remplacer l'absence d'un électron de valence par la présence d'un *trou* dans la bande de valence. Nous considérons alors l'interaction d'un électron dans la bande de conduction avec un trou dans la bande de valence et il est possible "d'oublier" les autres électrons de la bande de valence.

Considérons la bande de valence à laquelle nous avons retiré un électron de charge  $-|q|$ , de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , d'énergie  $E_{v,\mathbf{k}} = E_{v,\mathbf{0}} + \hbar^2\mathbf{k}^2/2m_v^*$  et de moment cinétique  $m_j$  comme représenté Figure 1.2 (b). Les caractéristiques de la bande de valence sont alors celles de la bande de valence pleine *moins*  $(-|q|, \mathbf{k}, E_{v,\mathbf{k}}, m_j)$  et si nous voulons ne pas tenir compte des autres électrons, il faut remplacer la bande de valence avec une place vide par une particule caractérisée par  $(|q|, -\mathbf{k}, -E_{v,\mathbf{k}} = -E_{v,\mathbf{0}} + \hbar^2\mathbf{k}^2/2(-m_v^*), -m_j)$ . Cette nouvelle particule, appelé *trou*, a donc une charge positive  $+|q|$ , un vecteur d'onde  $-\mathbf{k}$ , un moment cinétique  $-m_j$  et une masse positive  $m_h^* = -m_v^*$  puisque  $m_v^* < 0$ . L'énergie et le vecteur d'onde du trou étant opposés à ceux de l'électron, nous devons inverser les directions des axes dans le diagramme de bande de la Figure 1.2 (c) lorsque nous parlons de trou dans la bande de valence. Ainsi, un trou minimise son énergie en se plaçant le plus "haut" possible dans la bande de valence.

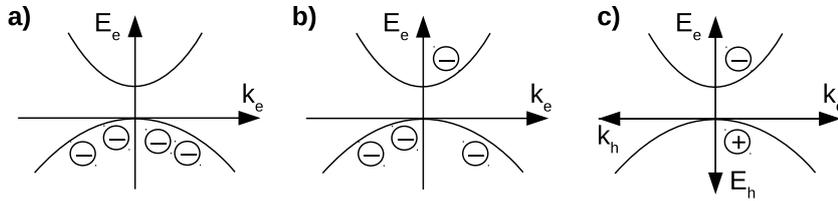


FIGURE 1.2 – Équivalence entre l'absence d'un électron dans la bande de valence et la présence d'un trou de valence. (a) Semiconducteur dans son état fondamental, les  $N$  électrons sont dans la bande de valence. (b) Semiconducteur excité : un électron passe dans la bande de conduction en laissant  $N - 1$  électrons dans la bande de valence. (c) Introduction du concept de trou qui permet "d'oublier" la bande de valence.

## 1.2.2 Confinement des porteurs : du massif aux boîtes quantiques

### 1.2.2.1 Idée générale

Nous avons vu dans la partie précédente comment décrire des électrons sans interaction dans un potentiel périodique. Nous nous intéressons ici aux systèmes confinés, c'est-à-dire à des systèmes où les dimensions ont été réduites dans une, deux ou trois directions de l'espace. Nous verrons dans la partie 1.2.2.4 qu'en pratique, le confinement des porteurs se fait grâce à la réalisation d'hétéro-structures qui consistent en une succession de matériaux semiconducteurs de gap différents comme schématisé Figure 1.3. Nous rappelons que nous nous plaçons autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  et nous ne considérons dans la suite que le minimum de la bande de conduction et le maximum de la bande de valence, ce qui justifie l'allure du diagramme de bande de la Figure 1.3.

Nous avons vu dans la partie 1.2.1.1 que dans un semiconducteur massif de volume  $L^3$ , les fonctions propres sont les fonctions de Bloch et s'écrivent  $\Psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})/L^{3/2}$ . Leur énergie autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ , donnée par la méthode  $\mathbf{k}\cdot\mathbf{p}$  (voir partie 1.2.1.3), est de la forme  $E_{n,\mathbf{k}} = E_{n,\mathbf{0}} + \hbar^2\mathbf{k}^2/2m^*$ . En redéfinissant les énergies par rapport à  $E_{n,\mathbf{0}}$ , ce qui revient à poser  $E_{n,\mathbf{k}} - E_{n,\mathbf{0}} = \varepsilon_{\mathbf{k}}$ , nous pouvons écrire  $\Psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  où la "fonction enveloppe"  $\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  [51] est fonction propre du Hamiltonien effectif  $\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{\mathbf{p}}^2/2m^*$  pour l'énergie propre  $\varepsilon_{\mathbf{k}} = \hbar^2\mathbf{k}^2/2m^*$ . Dans le cas d'un semiconducteur massif,  $\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}/L^{3/2}$  est une onde plane. Si nous considérons maintenant

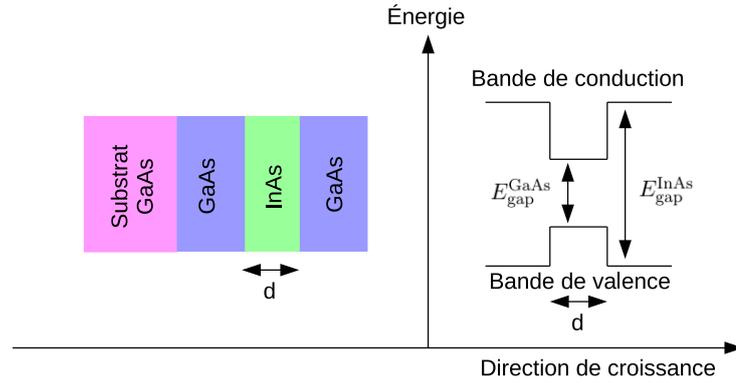


FIGURE 1.3 – Réalisation d'une hétéro-structure planeaire pour le confinement des porteurs dans une seule direction : puits quantique de InAs avec des barrières de GaAs.

une hétéro-structure semiconductrice comme celle schématisée Figure 1.3 et que nous supposons que les fonctions  $u_{n,\mathbf{k}}$  sont les mêmes dans les deux semiconducteurs<sup>1</sup>,  $\phi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r})$  est alors fonction propre du Hamiltonien effectif  $\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{\mathbf{p}}^2/2m^* + V_{\text{conf}}(\hat{\mathbf{r}})$  qui prend en compte l'alternance des matériaux semiconducteurs et donc le confinement des porteurs.

Dans la suite, nous allons dans un premier temps chercher les états propres de ce Hamiltonien effectif dans le cas d'un puits quantique où les porteurs sont confinés dans une seule direction de l'espace, puis nous nous intéresserons au cas des BQ où les électrons sont confinés dans les trois directions de l'espace.

### 1.2.2.2 Puits quantique

Considérons le cas d'un puits quantique de hauteur de barrière fini où les électrons sont confinés selon l'axe  $z$  (voir Figure 1.3). Nous cherchons les états propres du Hamiltonien effectif  $\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{\mathbf{p}}^2/2m^* + V_{\text{conf}}(\hat{\mathbf{r}})$  où  $V_{\text{conf}}(\hat{\mathbf{r}}) = V(z)\hat{1}$ . Nous allons commencer par nous intéresser aux états propres de la bande de conduction. Nous considérons un puits de potentiel tel que  $V(z) = -V_0$  pour  $-d/2 < z < d/2$  et  $V(z) = 0$  partout ailleurs comme schématisé Figure 1.4 (a). Dans ce cas,  $m^* = m_e^* = 0.067m_0$  est la masse effective d'un électron dans la bande de conduction.

L'équation aux valeurs propres  $\hat{H}_{\text{eff}} \phi_{\mathbf{k}} = \varepsilon_{\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{k}}$  que nous cherchons à résoudre s'écrit

$$\left[ \hat{H}_{\parallel}(x, y) + \hat{H}_{\perp}(z) \right] \phi_{\mathbf{k}}(x, y, z) = \varepsilon_{\mathbf{k}} \phi_{\mathbf{k}}(x, y, z), \quad (1.2.11)$$

avec  $\hat{H}_{\parallel}(x, y) = \hat{\mathbf{p}}_x^2/2m_e^* + \hat{\mathbf{p}}_y^2/2m_e^*$  et  $\hat{H}_{\perp}(z) = \hat{\mathbf{p}}_z^2/2m_e^* + V(z)$ . Les solutions de cette équation sont de la forme

$$\phi_{\mathbf{k}}(x, y, z) = f_{\parallel}(x, y) \times g_{\perp}(z). \quad (1.2.12)$$

L'équation de Schrödinger pour la fonction  $f_{\parallel}$  correspond à un mouvement de l'électron libre dans

1. Cette approximation consiste à considérer que le potentiel periodique est le même dans les deux semiconducteurs, c'est-à-dire que le paramètre de maille est le même ainsi que l'intensité du potentiel. Elle suppose aussi que les masses effectives des porteurs et les constantes diélectriques sont identiques.

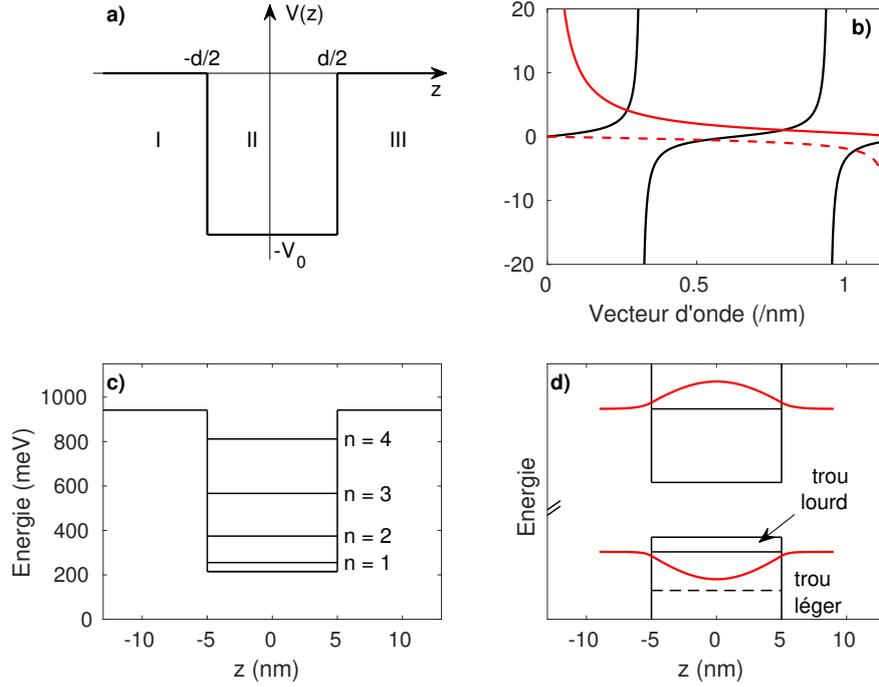


FIGURE 1.4 – (a) Puits de potentiel fini en dimension 1. (b) Résolution graphique des équations (1.2.16a) et (1.2.16b) : en noir le terme de gauche et en rouge et pointillé rouge les termes de droite. (c) Quantification des niveaux d'énergie pour les électrons de la bande de conduction dans le cas d'un puits quantique d'InAs dans GaAs de 10 nm. (d) Schéma du niveau fondamental pour la bande de conduction ( $\Gamma_6$ ) et de valence ( $\Gamma_8$ ). Les fonctions d'onde de l'état fondamental de la bande de conduction et de celui de la bande de trous lourds sont tracées en rouge.

le plan  $(x, y)$ , sa solution est donc une onde plane de la forme

$$f_{\parallel}(x, y) = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i(k_x x + k_y y)} = \frac{1}{\sqrt{L_x L_y}} e^{i(\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \boldsymbol{\rho})}, \quad (1.2.13)$$

où  $L_x$  et  $L_y$  sont les dimensions de la structure semiconductrice dans les directions  $x$  et  $y$ ,  $\mathbf{k}_{\parallel}$  est la composante du vecteur d'onde dans le plan parallèle au puits quantique et  $\boldsymbol{\rho} = x\vec{e}_x + y\vec{e}_y$ , où  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$  sont les vecteurs unitaires dans les directions  $x$  et  $y$ . L'énergie propre associée s'écrit, dans l'approximation de la masse effective,

$$\varepsilon_{\parallel}(\mathbf{k}_{\parallel}) = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}_{\parallel}^2}{2m_e^*}. \quad (1.2.14)$$

Intéressons nous maintenant aux états propres de  $\hat{H}_{\perp} = \hat{\mathbf{p}}_z^2 / 2m_e^* + V(z)$  qui correspond à l'hamiltonien d'un puits de potentiel fini à une dimension. Nous ne chercherons ici que les états liés (ou confinés) possédant une énergie négative (plus petite que la barrière). En utilisant l'expression de l'opérateur impulsion en une dimension, l'équation aux valeurs propres s'écrit

$$\frac{d^2 g_{\perp}}{dz^2} + \frac{2m_e^* \varepsilon_{\perp}}{\hbar^2} g_{\perp} = 0, \quad (1.2.15)$$

où  $\varepsilon_{\perp}$  est l'énergie propre associée à la partie  $g_{\perp}$  de la fonction d'onde. La résolution de cette équation dans les parties I, II et III de l'espace (voir Figure 1.4 (a)) et l'utilisation des conditions

aux limites  $g_{\perp}(x \rightarrow \pm\infty) = 0$  permettent de montrer que  $g_{\perp}$  est une onde évanescente dans les régions I et III mais oscille dans la région II. Les relations de continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée aux interfaces en  $z = -d/2$  et  $z = d/2$  imposent les relations suivantes, entre le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_{\perp}$  dans la partie II de l'espace et les différents paramètres du problème en fonction de la parité de  $g_{\perp}$  dans la partie II :

$$\tan\left(\frac{k_{\perp} d}{2}\right) = \sqrt{\frac{2m_e^* V_0}{\hbar^2 k_{\perp}^2} - 1} \quad \text{si } g_{\perp}^{\text{II}} \text{ paire,} \quad (1.2.16a)$$

$$\tan\left(\frac{k_{\perp} d}{2}\right) = \frac{-1}{\sqrt{\frac{2m_e^* V_0}{\hbar^2 k_{\perp}^2} - 1}} \quad \text{si } g_{\perp}^{\text{II}} \text{ impaire.} \quad (1.2.16b)$$

La Figure 1.4 (b) représente, en fonction de  $k_{\perp}$ , la fonction  $\tan(k_{\perp} d/2)$  en noire ainsi que le membre de droite des équations (1.2.16a) et (1.2.16b) en rouge et pointillé rouge respectivement, dans le cas d'un puits quantique de largeur  $d = 10$  nm d'InAs dans GaAs<sup>1</sup>. Les vecteurs d'onde accessibles dans le puits sont ceux pour lesquels les courbes se croisent, les énergies possibles pour un électron dans le puits sont donc quantifiées comme représenté Figure 1.4 (c) et peuvent être indexées par un entier  $n_z$  tel que  $\varepsilon_{n_z} = -V_0 + \hbar^2 k_{n_z}^2 / 2m_e^*$ . L'énergie totale d'un électron dans le puits quantique est donc la somme de deux termes, l'un correspondant à l'énergie cinétique d'un électron libre à deux dimensions (cf Eq.(1.2.14)), l'autre à l'énergie dans la direction de quantification,

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = \varepsilon_{\parallel}(\mathbf{k}_{\parallel}) + \varepsilon_{n_z}. \quad (1.2.17)$$

Nous traçons Figure 1.2.14 (d) les fonctions d'onde (solution de l'équation (1.2.15)) de l'état fondamental de la bande de conduction et de celui des trous lourds. Nous constatons qu'un porteur est bien confiné dans le puits quantique.

Une approche identique pour les électrons des bandes de valence  $\Gamma_8$  aboutit à une conclusion identique : les énergies accessibles sont quantifiées dans la direction  $z$ . Nous constatons que la dégénérescence des bandes  $\Gamma_8$  en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  est levée puisque l'énergie de confinement dépend de la masse effective, nous parlons alors de trous lourds pour la partie  $m_j = \pm 3/2$  et de trous légers pour la partie  $m_j = \pm 1/2$ . La Figure 1.5 donne les relations de dispersion autour de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  dans un plan orthogonal à l'axe  $z$ . Dans le cas d'un puits quantique InAs/GaAs, le modèle présenté ci-dessus prévoit un splitting entre la bande de trous lourds et celle de trous légers de  $\Delta_{hl} = 21$  meV qui est le bon ordre de grandeur pour ce type de puits quantique [52].

### 1.2.2.3 Boîte quantique

Nous considérons maintenant une BQ, c'est-à-dire un système où les électrons sont confinés dans les trois directions de l'espace. En première approximation, nous modélisons cette boîte par des puits finis de largeur variables ( $d_x$ ,  $d_y$  et  $d_z$ ) dans les trois directions de l'espace. Dans ce cas, le Hamiltonien effectif s'écrit

$$\begin{aligned} \hat{H}_{\text{eff}} &= \hat{\mathbf{p}}^2 / 2m^* + V_{\text{conf}}(\hat{\mathbf{r}}) \\ &= \hat{H}_x(x) + \hat{H}_y(y) + \hat{H}_z(z), \end{aligned} \quad (1.2.18)$$

1. Dans le cas d'un puits quantique formé par l'inclusion d'un semiconducteur A dans un semiconducteur B, il est communément admis de séparer la différence de gap en 2/3 pour les électrons et 1/3 pour les trous. Pour un puits quantique de InAs dans GaAs, cela revient à prendre  $V_0 = 2/3 (E_{\text{gapGaAs}} - E_{\text{gapInAs}}) \approx 730$  meV.

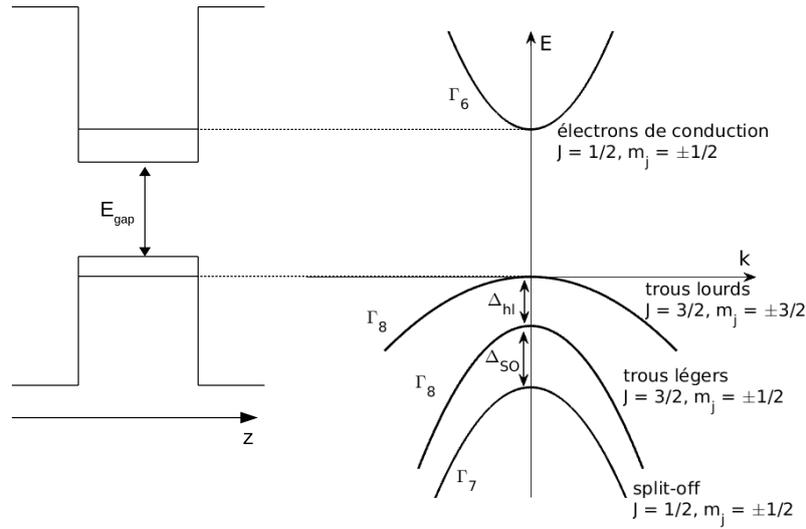


FIGURE 1.5 – Structure de bandes pour les bandes de conduction et de valence au voisinage de  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  dans le cas d'un puits quantique et dans le plan des couches. Le confinement lève la dégénérescence des bandes  $\Gamma_8$  en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  en raison de leur masse effective différente.

où  $\hat{H}_\alpha(\alpha) = \hat{p}_\alpha^2/2m_e^* + V_\alpha(\alpha)\hat{1}$  avec  $\alpha = x, y, z$ . Comme dans la partie précédente,  $V_\alpha$  vaut  $-V_0$  entre  $z = -d_\alpha/2$  et  $z = d_\alpha/2$  et zéro ailleurs. La fonction enveloppe s'écrit alors

$$\phi_{\mathbf{k}}(x, y, z) = g_x(x) \times g_y(y) \times g_z(z). \quad (1.2.19)$$

Comme précédemment, pour  $\alpha = x, y, z$ , les équations aux valeurs propres s'écrivent

$$H_\alpha(\alpha)g_\alpha(\alpha) = \varepsilon_\alpha g_\alpha(\alpha). \quad (1.2.20)$$

L'énergie totale d'un électron dans la BQ est alors donnée par

$$\varepsilon_{n_x, n_y, n_z} = \varepsilon_{n_x} + \varepsilon_{n_y} + \varepsilon_{n_z} \quad (1.2.21)$$

avec,  $\varepsilon_{n_\alpha} = V_0 + \hbar^2 k_{n_\alpha}^2/2m_e^*$  pour  $\alpha = x, y, z$ , les  $k_{n_\alpha}$  étant solution d'équations du type (1.2.16a) et (1.2.16b). Les énergies propres sont donc la somme de trois énergies et nous obtenons des niveaux d'énergie discrets pour une BQ. Ce résultat important va être mis à profit dans la suite.

Nous constatons que, comme dans le cas d'un puits quantique, la dégénérescence en  $\mathbf{k} = \mathbf{0}$  des bandes  $\Gamma_8$  est levée (voir Figure 1.5) puisque l'énergie de confinement dépend de la masse effective. Comme nous le verrons dans la partie 1.2.2.4, les BQ ne sont bien sur ni des cubes, ni des sphères; il existe toujours une direction de quantification privilégiée associée à la direction de l'espace suivant laquelle la dimension de la boîte quantique est la plus petite, la direction de croissance. Cette direction, qui conduit à l'énergie de confinement la plus grande, détermine l'axe de quantification prépondérant pour séparer les trous lourds et légers. Brandt *et al* ont mesuré en 1992 un splitting trous lourds - trous légers de l'ordre de 30 meV pour des puits quantiques InAs dans GaAs de quelques mono-couches [53]. Cette valeur est généralement retenue pour les BQ InAs, leur épaisseur la plus petite étant aussi de quelques mono-couches.

Dans la suite, nous ne nous intéresserons qu'aux trous lourds, les trous légers étant à des énergies hors de la plage étudiée. Néanmoins, il est parfois nécessaire de considérer le mélange de bande trous lourds - trous légers, comme par exemple dans l'étude de la polarisation de la luminescence émise par une BQ [54]. De plus, le modèle simple du puits carré utilisé précédemment a tendance à surestimer la valeur des énergies de confinement car dans la réalité, les puits de potentiel ne sont pas abrupts. C'est pourquoi de nombreuses modélisations ont été réalisées en prenant une forme de potentiel plus proche de la réalité<sup>1</sup>, par exemple des boîtes en forme de lentille ayant une symétrie de révolution autour de l'axe de croissance  $z$ , et dont les dimensions dans le plan ( $xy$ ) sont très supérieures à celle dans la direction  $z$  [55, 56].

Pour finir, nous donnons de gauche à droite Figure 1.6, la forme de la densité d'états  $\rho(E)$  dans les cas du matériau massif, du puits quantique, du fil quantique et de la BQ. Il s'agit d'une quantité importante qui intervient dans l'absorption optique des structures semiconductrices et qui dépend fortement de la dimensionnalité du système.

- ★ En l'absence de confinement, la densité d'états électroniques est de la forme  $\rho(E) = \sqrt{E}$ .
- ★ Avec un confinement dans une direction de l'espace (puits quantique), les électrons sont libres dans les deux directions restantes de l'espace avec une densité d'états constante. La quantification des niveaux d'énergie dans la direction de confinement donne la structure en marche d'escalier.
- ★ Avec un confinement dans deux directions de l'espace (fil quantique), les électrons sont libres dans une seule direction avec une densité d'état en  $1/\sqrt{E}$ . Le confinement dans les deux autres directions conduit à la forme de densité d'états présentée sur la figure.
- ★ Avec un confinement dans les trois directions de l'espace (BQ), l'énergie est quantifiée dans ces trois directions et nous avons des niveaux d'énergie discrets.

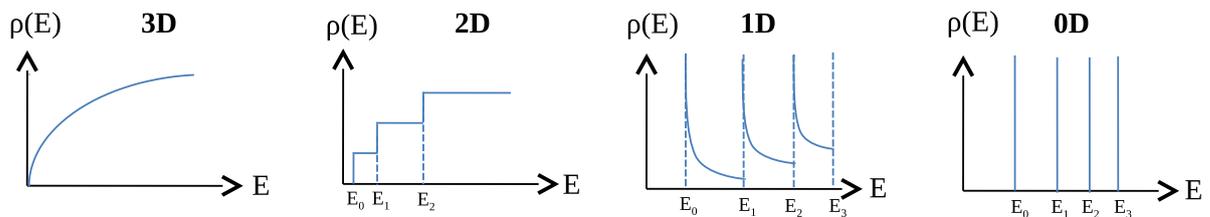


FIGURE 1.6 – Évolution de la densité d'états électroniques en fonction de la dimensionnalité du système.

#### 1.2.2.4 Croissance épitaxiale de boîtes quantiques

Nous venons de montrer que le confinement des porteurs permet de quantifier le spectre d'énergie. Un tel potentiel de confinement peut être réalisé grâce à la croissance d'hétérostructures où des matériaux de gap différents sont empilés. La différence de gap crée alors un puits de potentiel dans la direction de l'empilement. Pour fabriquer des BQ, il est en fait nécessaire de réaliser une

1. Ces potentiels peuvent être déterminées grâce à des images de microscopie (AFM, STM...)

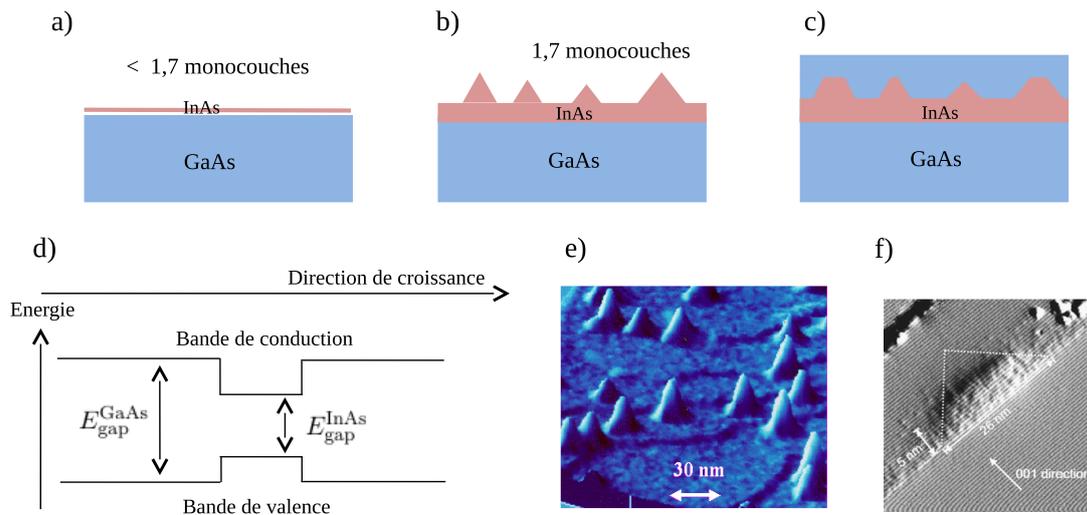


FIGURE 1.7 – (a), (b) et (c) Différentes étapes de la croissance de BQ auto-organisées d’InAs/GaAs. (d) Allure des bandes de valence et de conduction pour une inclusion d’InAs dans GaAs suivant l’axe de croissance. (e) Image AFM d’îlots d’InAs sur un substrat de GaAs avant dépôt de la dernière couche de GaAs, réalisé au Laboratoire de Photonique et Nanostructures par J.M. Moison et al [57]. (f) Image STM d’une coupe de BQ après dépôt de la dernière couche de GaAs [58].

inclusion nanométrique d’un semiconducteur de ”faible” gap dans un autre de ”grand” gap, comme schématisé Figure 1.7.

Nous détaillerons dans la partie 2.2.3 la structure complète des échantillons utilisés durant cette thèse. Nous ne donnons ici que le principe de croissance des BQ d’InAs/GaAs, fabriquées par épitaxie par jets moléculaires (EJM) au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) par l’équipe d’Aristide Lemaître. Au cours de la croissance de couches d’InAs sur GaAs, des contraintes apparaissent à l’interface des deux matériaux, dues à la différence de paramètre de maille ( $a_{\text{InAs}} = 1.07 a_{\text{GaAs}}$ ). La relaxation de ces contraintes donne naissance aux BQ. Ce mode de croissance, appelé Stranski-Krastanov [21], se résume en trois étapes schématisées Figure 1.7 (a), (b) et (c).

1. Une couche d’InAs est déposée par EJM sur du GaAs (Figure 1.7 (a)). Tant que l’épaisseur reste inférieure à une épaisseur critique de l’ordre de 1.7 monocouches, la maille d’InAs s’adapte à celle de GaAs et des contraintes s’accumulent.
2. Lorsque l’épaisseur atteint l’épaisseur critique, les contraintes relaxent et des îlots nanométriques d’InAs se forment, répartis aléatoirement sur la couche d’InAs (Figure 1.7 (b) et (e)). Ces îlots sont de forme conique, leur rayon à la base est d’environ 20 nm et leur hauteur est de l’ordre du nanomètre. La monocouche restante forme une sorte de puits quantique communément appelée couche de mouillage (*wetting layer* en anglais).
3. Pour finir, une couche de GaAs est déposée sur le plan de boîtes. Cette couche encapsule les îlots d’InAs qui prennent alors la forme de cônes tronqués (Figure 1.7 (c) et (f)).

Un paramètre important lors de l’étude expérimentale de BQ est la température. En effet, la température contrôle la longueur d’onde thermique de de Broglie  $\lambda_{th}$  des porteurs, et il n’est possible

d'observer des effets quantiques liés à la discrétisation de la structure électronique, seulement si  $\lambda_{th}$  est plus grande que la taille caractéristique du confinement. Pour un électron dans la bande de conduction,  $\lambda_{th}$  vaut environ 5 nm à 300 K et 30 nm à 10 K et au vu des dimensions des boîtes, nous constatons qu'il est nécessaire de travailler à des températures cryogéniques si nous souhaitons observer des phénomènes quantiques liés au confinement des porteurs. De plus, l'écart entre les deux niveaux de plus basse énergie de la bande de conduction étant de l'ordre de 10 meV, il est important de travailler à une température de l'ordre de 10 K pour ne pas peupler thermiquement les états excités de la boîte.

### 1.2.3 Paires électron-trou

#### 1.2.3.1 Paire électron-trou en interaction dans un semiconducteur massif

Nous avons vu dans la partie 1.2.1.4 qu'une excitation dans un semiconducteur correspond à créer une paire électron-trou. L'électron et le trou étant des particules chargées, elles interagissent par l'interaction coulombienne. Le problème est très semblable à celui de l'atome d'hydrogène, à la différence que l'interaction coulombienne est réduite par la constante diélectrique<sup>1</sup> du semiconducteur  $\epsilon_{sc} \simeq 10$  [59], et que les masses des porteurs sont différentes de celles des porteurs libres. Nous parlons alors de paire électron-trou corrélée ou d'exciton de Wannier, exciton dont la distance électron-trou correspond à plusieurs mailles du réseau cristallin. À cause de l'interaction coulombienne, les fonctions propres ne se factorisent plus en une partie électronique et une partie trou. Les nouveaux états propres du système, notés  $\Psi_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$ , sont solutions de l'équation aux valeurs propres  $\hat{H}_X \Psi_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h) = (E_{\mathbf{k}_e \mathbf{k}_h} - E_{\text{gap}}) \Psi_{\mathbf{k}_e, \mathbf{k}_h}(\mathbf{r}_e, \mathbf{r}_h)$  où  $\hat{H}_X$  s'écrit

$$\hat{H}_X = \frac{\hat{\mathbf{p}}_e^2}{2m_e^*} + \frac{\hat{\mathbf{p}}_h^2}{2m_h^*} - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_{sc}\epsilon_0|\mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h|}. \quad (1.2.22)$$

En passant dans le référentiel barycentrique en définissant les coordonnées du centre de masse et relative,  $\mathbf{R} = (m_e^* \mathbf{r}_e + m_h^* \mathbf{r}_h)/(m_e^* + m_h^*)$  et  $\mathbf{r} = \mathbf{r}_e - \mathbf{r}_h$ ,  $\hat{H}_X$  se sépare en deux contributions, une pour le mouvement du centre de masse et une pour le mouvement relatif :

$$\hat{H}_X = \frac{\hat{\mathbf{P}}^2}{2M_X^*} + \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2\mu_X} - \frac{q^2}{4\pi\epsilon_{sc}\epsilon_0|\mathbf{r}|}, \quad (1.2.23)$$

où  $M_X = m_e^* + m_h^*$  et  $\mu_X^{-1} = m_e^{*-1} + m_h^{*-1}$  et où  $\hat{\mathbf{P}}$  et  $\hat{\mathbf{p}}$  sont les opérateurs impulsions associés au mouvement du centre de masse et au mouvement relatif respectivement. Nous constatons alors que  $\mathbf{k}_e$  et  $\mathbf{k}_h$  ne sont pas de bons nombres quantiques et nous indexerons dans la suite les fonctions et les énergies propres de  $\hat{H}_X$  par les indices  $\mathbf{Q}$  et  $\nu$ ,  $\mathbf{Q}$  étant le vecteur d'onde du centre de masse et  $\nu$  un indice faisant référence au mouvement relatif. Les fonctions propres  $\Psi_{\mathbf{Q}, \nu}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  se factorisent alors en une partie reliée au mouvement du centre de masse et une partie reliée au mouvement relatif,

$$\Psi_{\mathbf{Q}, \nu}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \varphi_{\mathbf{Q}}(\mathbf{R}) f_{\nu}(\mathbf{r}). \quad (1.2.24)$$

1. Cette constante diélectrique est due au fait que les électrons de la bande de valence ne peuvent être totalement oubliés malgré l'introduction du concept de *trou*. Il existe en réalité un écrantage de l'interaction coulombienne dû à la présence des autres électrons.

Le mouvement du centre de masse étant libre dans les trois directions de l'espace, les énergies propres sont de la forme  $E_{\mathbf{Q}} = \hbar^2 \mathbf{Q}^2 / 2M_X$  et les fonctions propres sont des ondes planes qui s'écrivent  $\varphi_{\mathbf{Q}}(\mathbf{R}) = e^{-\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}} / L^{3/2}$ . Pour le mouvement relatif,  $f_{\nu}(\mathbf{r})$  est fonction propre de  $\hat{H}_{\text{rel}} = \hat{\mathbf{p}}^2 / 2\mu_X - q^2 / 4\pi\epsilon_{\text{sc}}\epsilon_0 |\mathbf{r}|$ . Elle se sépare en une partie radiale et une partie angulaire, la partie angulaire correspondant aux harmoniques sphériques [60]. Les énergies correspondant à des états liés sont négatives et quantifiées,

$$E_n = -\frac{R_X}{n^2} \quad \text{avec} \quad R_X = \frac{\mu_X}{2\hbar^2 \epsilon_{\text{sc}}^2} \left( \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \sim 1 \text{ meV}. \quad (1.2.25)$$

Les énergies propres d'un exciton dans un semiconducteur massif s'écrivent donc finalement

$$E_{n,\mathbf{Q}} = E_{\text{gap}} + \frac{\hbar^2 \mathbf{Q}^2}{2M_X} - \frac{R_X}{n^2}. \quad (1.2.26)$$

Il existe aussi des états d'énergie positive, appelés états de *diffusions*, correspondant à des états où la paire électron-trou se disloque. Il est possible de définir le rayon de Bohr de l'exciton qui correspond à la taille caractéristique de la paire électron-trou pour un exciton dans un état lié. Pour le niveau le plus bas, il s'écrit

$$a_X = \frac{\hbar^2 \epsilon_{\text{sc}}}{\mu_X} \frac{4\pi\epsilon_0}{q^2}. \quad (1.2.27)$$

Dans des semiconducteurs tels que GaAs et InAs,  $a_X \sim 25 \text{ nm}$  : la paire électron-trou est délocalisée sur quelques dizaines de mailles du réseau cristallin. Notons aussi que l'énergie de Rydberg de l'exciton  $R_X$  est inversement proportionnelle au carré de son rayon de Bohr  $a_X$  : plus l'exciton est étendu, plus son énergie de liaison est faible.

### 1.2.3.2 Paire électron-trou en interaction dans des structures confinées

Considérons maintenant le cas d'un exciton dans une structure confinée telle qu'un puits ou une BQ. Pour des puits, tels que ceux présentés dans la partie 1.2.2.2, l'énergie totale de l'exciton est de la forme (1.2.17)

$$E_{n,n_z,\mathbf{Q}} = E_{\text{gap}} + \frac{\hbar^2(Q_x^2 + Q_y^2)}{2M_X} + E_{n_z^e, n_z^h}^{\text{conf}} - E_{\text{Coul},n}, \quad (1.2.28)$$

où le deuxième terme correspond à l'énergie du centre de masse associée au mouvement libre dans le plan  $(xy)$ . Le troisième terme  $E_{n_z^e, n_z^h}^{\text{conf}}$ , correspond à l'énergie de confinement de l'électron et du trou et les nombres quantiques  $n_z^e$  et  $n_z^h$  correspondent aux différents niveaux électroniques du puits dans lesquels se trouvent l'électron et le trou. Finalement, le dernier terme définit l'énergie de liaison de l'exciton en deux dimensions, le nombre  $n$  caractérisant les différents niveaux électroniques du système hydrogénoïde.

Dans le cas d'une BQ, les porteurs sont confinés dans les trois directions de l'espace et l'énergie totale d'une paire électron-trou est de la forme

$$E_{n_e, n_h} = E_{\text{gap}} + E_{n_e, n_h}^{\text{conf}} - E_{\text{Coul}}, \quad (1.2.29)$$

où  $n^{e,h} = (n_x^{e,h}, n_y^{e,h}, n_z^{e,h})$  sont les indices de quantification des porteurs et  $E_{\text{Coul}}$  est une énergie positive due à l'attraction coulombienne entre l'électron et le trou. Il est important de noter que

le confinement des porteurs sur une taille nanométrique, inférieure à la taille du rayon de Bohr de l'exciton dans le matériaux massif, fait que l'interaction coulombienne n'est plus la raison principale de la liaison entre porteurs. Les niveaux discrets dus au confinement sont simplement "habillés" par l'interaction coulombienne et nous ne pouvons plus parler d'exciton. C'est la raison pour laquelle dans la suite de ce manuscrit nous utiliserons le terme de *paire électron-trou*. La Figure 1.8 donne l'allure de l'énergie de liaison d'une paire électron-trou en fonction de la taille du confinement dans le cas de barrières de potentiel infinies. Dans la limite où les porteurs ne sont pas confinés, l'énergie de liaison tend vers celle de l'exciton, alors que pour une taille de confinement tendant vers zéro, l'énergie de liaison diverge puisque la distance entre l'électron et le trou tend vers zéro.

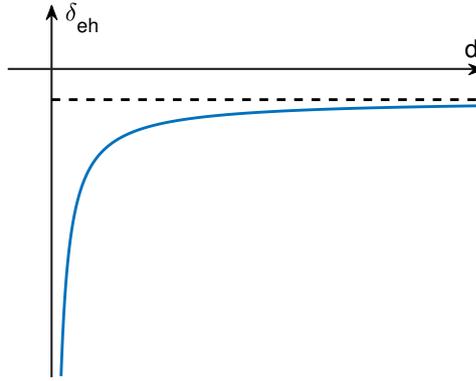


FIGURE 1.8 – Énergie de liaison d'une paire électron-trou en fonction de la taille du confinement dans le cas de barrières de potentiel infinies.

Pour conclure, nous venons de montrer qu'une paire électron-trou dans une BQ a une structure électronique discrète correspondant à des raies de luminescence fines. Dans la suite, nous verrons que ces raies sont élargies d'environ  $1 \mu\text{eV}$  par leur temps de vie radiatif et nous étudierons en détail les autres sources d'élargissement dues aux processus de décohérence liées à l'interaction de la BQ avec la matrice solide environnante. Nous modéliserons une BQ par un système à deux niveaux,  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$ , où  $|0\rangle$  correspond à la boîte dans son état fondamental (*i. e.* pas de paire électron-trou) et  $|X\rangle$  à l'état excité de plus basse énergie (*i.e.* une paire électron-trou dans l'état de plus basse énergie).

#### 1.2.4 Structure fine des états de paire électron-trou

Nous avons vu dans la partie 1.2.2 que le confinement des porteurs entraîne le rejet de la bande de trous légers vers les hautes énergies et qu'il est possible de ne considérer que la bande de trous lourds de moment cinétique  $m_j = \pm 3/2$ . Une paire électron-trou sera donc la combinaison d'un trou lourd ( $\pm 3/2$ ) et d'un électron de la bande de conduction de moment cinétique dû seulement à son spin  $\pm 1/2$ . Nous avons alors quatre états possibles pour cette paire (voir Figure 1.9) :

- $|+2\rangle = |+\frac{3}{2}; +\frac{1}{2}\rangle$  de moment cinétique total  $m_j = +2$ ,
- $|+1\rangle = |+\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}\rangle$  de moment cinétique total  $m_j = +1$ ,
- $|-1\rangle = |-\frac{3}{2}; +\frac{1}{2}\rangle$  de moment cinétique total  $m_j = -1$ ,
- $|-2\rangle = |-\frac{3}{2}; -\frac{1}{2}\rangle$  de moment cinétique total  $m_j = -2$ .

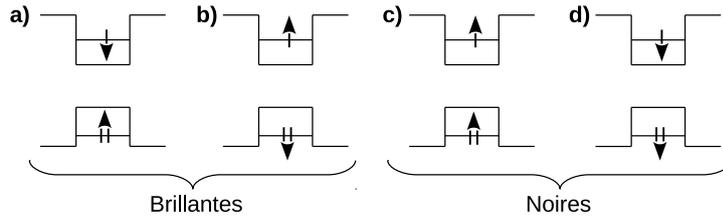


FIGURE 1.9 – Structures électroniques possibles d'une paire électron-trou dans une BQ. Les paires de moment cinétique total  $\pm 1$  (a et b) sont couplées à la lumière alors que celles de moment cinétique total  $\pm 2$  (c et d) ne le sont pas.

Les états  $|\pm 1\rangle$  sont couplés à la lumière alors que les états  $|\pm 2\rangle$  ne le sont pas puisque l'interaction lumière-matière doit conserver le moment cinétique (celui des photons étant  $0; \pm 1$ ). Nous parlons alors de paire électron-trou *noires* et *brillantes*, les paires brillantes étant couplées à des photons de polarisation  $\sigma_+$  ou  $\sigma_-$ .

A priori, ces quatre états sont dégénérés en énergie comme schématisé Figure 1.10 (a). Cependant, nous avons déjà mentionné que le concept de trou pouvait être un peu brutal dans le cas de certains effets physiques, tel que l'existence d'une constante diélectrique du semiconducteur  $\epsilon_{sc}$ , qui nécessite la prise en compte de l'intégralité des excitations possibles de la bande de valence pour pouvoir être expliquée. Aussi, l'interaction coulombienne interbande (aussi appelé échange électron-trou) est à l'origine de la levée de dégénérescence des paires électron-trou noires et brillantes [59], comme représenté Figure 1.10 (b). L'idée est que les paires électron-trou brillantes étant couplées à la lumière, des processus d'absorption et émission de photons virtuels existent, conduisant à décaler les états brillants vers les hautes énergies. Dans le cas des BQ, cet écart en énergie a été mesuré de l'ordre de la centaine de  $\mu\text{eV}$  [61]. Une manifestation courante de la présence des excitons noirs est l'existence d'un temps long dans la décroissance de la population de l'état excité, puisque les

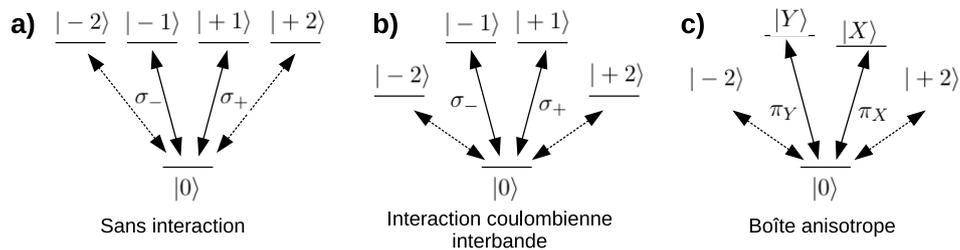


FIGURE 1.10 – (a) Paires électron-trou résultant d'un trou lourd de moment cinétique  $\pm 3/2$  et d'un électron de la bande de conduction de moment cinétique  $\pm 1/2$ . Les états  $|\pm 1\rangle$  de moment cinétique total  $\pm 1$  sont couplés à la lumière et sont appelés brillants alors que les états  $|\pm 2\rangle$ , appelés noirs, ne le sont pas puisque leur moment cinétique vaut  $\pm 2$ . (b) Levée de la dégénérescence des états noirs et brillants par l'interaction coulombienne interbande. (c) Levée de la dégénérescence des états  $|\pm 1\rangle$  due à l'anisotropie de la boîte, les nouveaux états propres sont polarisés linéairement.

états noirs peuvent servir de "réservoir" pour les paires électron-trou [62, 63]. Un autre effet remarquable est la prédiction d'un condensat noir d'excitons [64, 65], mis récemment en évidence expérimentalement par le groupe de F. Dubin à l'INSP [66, 67, 68].

Si nous considérons maintenant des BQ avec un potentiel de confinement anisotrope, dû par exemple à la forme elliptique de la base de la boîte, il est possible de montrer que la dégénérescence des états brillants est levée [61], comme le montre la Figure 1.10 (c). Les nouveaux états propres étant des combinaisons linéaires de  $|\pm 1\rangle$ , ils sont couplés à des photons polarisés linéairement, comme nous le mettrons en évidence expérimentalement dans la partie 2.3.2. Cette structure fine des états brillants est caractérisée par un écart en énergie (*splitting* de structure fine) qui dépend de la forme du potentiel de confinement de la boîte et, pour les boîtes auto-organisées d'InAs/GaAs, peut prendre des valeurs de quelques dizaines à quelques centaines de  $\mu\text{eV}$  [61, 69, 70].

### 1.2.5 États multi-chargés d'une boîte quantique

Nous nous sommes intéressés jusqu'à présent au cas d'une boîte avec une seule paire électron-trou. Pour finir cette partie sur les états électroniques, nous allons discuter rapidement les propriétés d'une paire avec un électron ou un trou supplémentaire, ou de deux paires comme représentées sur la Figure 1.11.

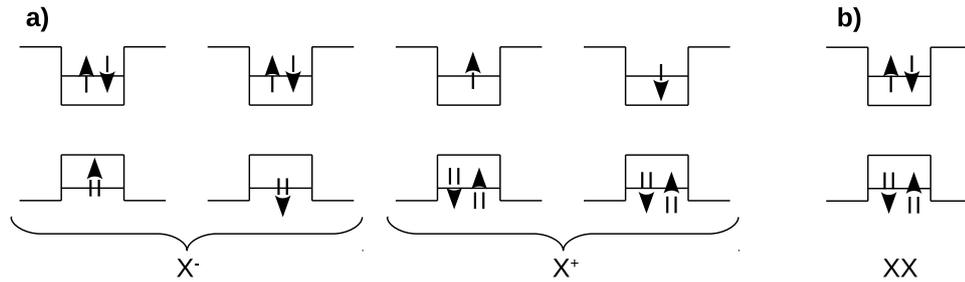


FIGURE 1.11 – (a) Les différents états possibles pour une paire plus un porteur dans une BQ, à gauche chargés négativement ( $X^-$ ) et à droite chargés positivement ( $X^+$ ). (b) État pour deux paires dans une BQ.

#### 1.2.5.1 Trio

Nous appelons *trio* (et pas *trion*) une paire électron-trou dans une BQ à laquelle un électron ou un trou a été ajouté par injection électrique ou dopage résiduel (voir Figure 1.11 (a)). Dans le premier cas la boîte est chargée négativement et nous noterons le trio  $X^-$ , dans le deuxième elle est chargée positivement et nous noterons  $X^+$ . Le principe de Pauli imposant que deux fermions ne peuvent se trouver dans le même état quantique, deux porteurs occupant le même niveau électronique sont nécessairement de spins opposés et les trios sont systématiquement couplés à la lumière. Bayer *et al* ont montré que pour un trio, l'interaction coulombienne interbande disparaît et donc que le *splitting* de structure fine est nul [61]. Comme dans le cas de la paire électron-trou, nous donnons Figure 1.12 l'énergie de liaison entre le porteur supplémentaire et la paire électron-trou du trio en fonction de

la taille du confinement et dans le cas de barrières infinies. Dans la limite où les porteurs ne sont pas confinés, l'énergie de liaison tend vers celle du trion, alors que pour une taille de confinement tendant vers zéro, l'énergie de liaison tend vers zéro puisque le porteur supplémentaire "voit" un électron sur un trou, c'est-à-dire une charge nulle.

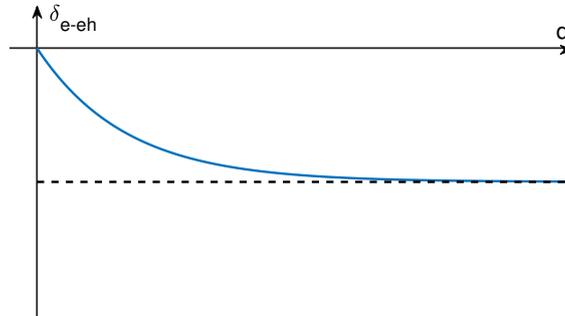


FIGURE 1.12 – Énergie de liaison entre le porteur supplémentaire et la paire électron-trou du trio en fonction de la taille du confinement et dans le cas de barrières infinies.

### 1.2.5.2 Double paire électron-trou

Il est aussi possible d'injecter deux paires électron-trou dans une boîte. Nous créons alors ce que nous appellerons une double paire électron-trou (ou biexciton lorsque la taille de la boîte devient grande devant le rayon de Bohr des excitons). Les paires électron-trou se recombinent radiativement l'une après l'autre, la première à une énergie décalée de quelques meV à cause de l'interaction coulombienne avec la deuxième. La Figure 1.13 présente la cascade radiative de la double paire électron-trou.

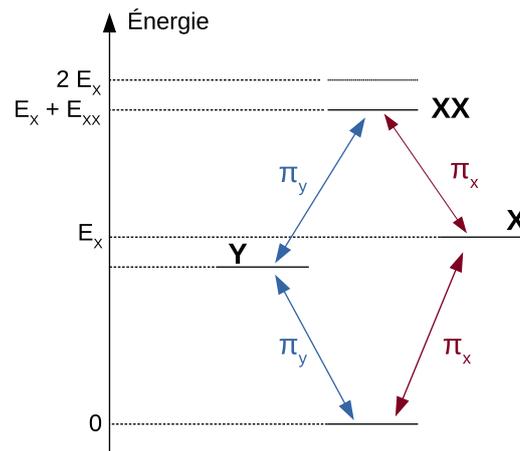


FIGURE 1.13 – Cascade radiative lors de la recombinaison d'une double paire électron-trou.

Pour finir, mentionnons que d'autres complexes peuvent exister (comme la double paire chargée  $2X^\pm$ , la paire électron-trou doublement chargée  $X^{+2}$  et  $X^{-2}$ , etc) et ont été observées [71, 72]. Leur étude sort du cadre de cette thèse.

## 1.3 Boîte quantique en interaction avec la lumière

Dans cette partie, nous nous intéressons au couplage entre une BQ et la lumière. Nous donnons ici les bases du cadre théorique nécessaire à l'interprétation de l'étude expérimentale de la luminescence d'une BQ excitée optiquement à la résonance et présentée dans la suite. Nous modélisons une boîte par un système à deux niveaux et nous étudions dans un premier temps son interaction avec un champ laser monomode décrit classiquement. Nous verrons qu'en régime impulsional, il est possible de contrôler de manière déterministe l'état du système, ce qui fait des BQ de bons candidats pour des applications en information quantique, mais aussi des systèmes modèles pour l'étude de processus physiques fondamentaux. Dans un deuxième temps, nous considérons l'interaction entre une boîte initialement dans son état excité et l'ensemble des modes du champ électromagnétique et nous montrons que ce couplage est responsable de l'existence d'un temps de vie fini pour une paire électron-trou dans la boîte. Enfin, nous verrons comment en déduire la forme Lorentzienne des raies de luminescence ainsi que l'existence d'un temps de cohérence fini pour les photons émis.

### 1.3.1 Hamiltonien d'interaction lumière-matière

Nous décrivons dans cette partie l'interaction de particules chargées avec un champ électromagnétique classique. Pour cela nous rappelons ci-dessous les équations de Maxwell-Lorentz qui relient les champs électrique  $\mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t)$  et magnétique  $\mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t)$  aux densités de charge  $\rho(\hat{\mathbf{r}}, t)$  et de courant  $\mathbf{j}(\hat{\mathbf{r}}, t)$  :

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \frac{1}{\varepsilon_0} \rho(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (\text{Maxwell} - \text{Gauss}) \quad (1.3.1a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t) = 0, \quad (\text{Maxwell} - \text{flux}) \quad (1.3.1b)$$

$$\nabla \times \mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (\text{Maxwell} - \text{Faraday}) \quad (1.3.1c)$$

$$\nabla \times \mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t) + \frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \mathbf{j}(\hat{\mathbf{r}}, t). \quad (\text{Maxwell} - \text{Ampère}) \quad (1.3.1d)$$

#### 1.3.1.1 Forme générale

Considérons un électron de masse  $m$  et de charge  $q$  soumis à un potentiel extérieur  $V(\hat{\mathbf{r}})$  et en interaction avec un champ électromagnétique décrit par les potentiels scalaire et vecteur  $U(\hat{\mathbf{r}}, t)$  et  $\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t)$ . Le Hamiltonien est donné par [73]

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} \left( \hat{\mathbf{p}} - q\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) \right)^2 + qU(\hat{\mathbf{r}}, t) + V(\hat{\mathbf{r}}), \quad (1.3.2)$$

où  $U(\hat{\mathbf{r}})$  et  $\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}})$  sont reliés aux champs électrique et magnétique par

$$\mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \nabla \times \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (1.3.3a)$$

$$\mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) - \nabla U(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (1.3.3b)$$

qui sont des conséquences des équations de Maxwell-flux (1.3.1b) et Maxwell-Faraday (1.3.1c)<sup>1</sup>. Le couple  $(U(\hat{\mathbf{r}}, t), \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t))$  détermine de manière unique le couple  $(\mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t), \mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t))$ ; en revanche

1. Les équations (1.3.3a) et (1.3.3b) sont dues aux relations  $\hat{\nabla} \cdot [\hat{\nabla} \times \mathbf{A}] = 0$  et  $\hat{\nabla} \times [\hat{\nabla} \mathbf{A}] = 0$ .

un couple  $(\mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t), \mathbf{B}(\hat{\mathbf{r}}, t))$  est associé à une infinité de couples  $(U(\hat{\mathbf{r}}, t), \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t))$ . Le passage d'un couple à l'autre se fait par *une transformation de jauge* qui laisse les équations (1.3.3a) et (1.3.3b) inchangées :

$$\mathbf{A}'(\hat{\mathbf{r}}, t) = \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) + \nabla F(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (1.3.4a)$$

$$U'(\hat{\mathbf{r}}, t) = U(\hat{\mathbf{r}}, t) - \frac{\partial}{\partial t} F(\hat{\mathbf{r}}, t), \quad (1.3.4b)$$

où  $F(\hat{\mathbf{r}}, t)$  est une fonction scalaire arbitraire. Nous pouvons alors choisir le champ scalaire  $F(\hat{\mathbf{r}}, t)$  selon le problème considéré. Nous présentons dans la suite deux jauges souvent utilisées pour l'étude de l'interaction lumière-matière : la jauge de Coulomb et celle de Göppert-Mayer utile lorsqu'il s'agit d'un dipôle en interaction avec le champ électromagnétique, ce qui est le cas des systèmes confinés tels que les atomes ou les BQ.

### 1.3.1.2 Jauge de Coulomb

Parmi les diverses jauges possibles, la jauge de Coulomb est souvent utilisée pour traiter les problèmes d'interaction d'une particule quantique avec un champ électromagnétique. Elle correspond à prendre

$$\hat{\nabla} \cdot \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) = 0, \quad (1.3.5)$$

et les équations de Maxwell-Gauss (1.3.1a) et de Maxwell-Ampère (1.3.1d) deviennent

$$\Delta U = -\frac{\rho}{\varepsilon_0}, \quad (1.3.6)$$

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) - \hat{\Delta} \mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \mu_0 \mathbf{j}(\hat{\mathbf{r}}, t) - \frac{1}{c^2} \hat{\nabla} \frac{\partial}{\partial t} U(\hat{\mathbf{r}}, t). \quad (1.3.7)$$

Dans le vide,  $\rho = 0$  et  $\mathbf{j}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \mathbf{0}$  ce qui entraîne que  $U$  est une constante qu'il est possible de choisir égale à zéro<sup>1</sup>,  $U(\hat{\mathbf{r}}, t) = 0$ . De plus, pour une onde plane se propageant avec un vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , la jauge de Coulomb implique que la composante du potentiel vecteur parallèle à  $\mathbf{k}$  est nulle, ainsi

$$\mathbf{A}(\hat{\mathbf{r}}, t) = \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t). \quad (1.3.8)$$

Dans cette jauge, le hamiltonien (1.3.2) du système devient

$$\begin{aligned} \hat{H} &= \frac{1}{2m} \left( \hat{\mathbf{p}} - q \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \right)^2 + V(\hat{\mathbf{r}}) \\ &= \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} - \frac{q}{2m} \left( \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) + \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right) + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)}{2m} + V(\hat{\mathbf{r}}). \end{aligned} \quad (1.3.9)$$

En utilisant l'expression de l'opérateur impulsion  $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar \hat{\nabla}$  nous remarquons que

$$\begin{aligned} \left( \hat{\mathbf{p}} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) - \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot \hat{\mathbf{p}} \right) \psi(\mathbf{r}, t) &= -i\hbar \left( \hat{\nabla} [\mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \psi(\mathbf{r}, t)] - \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot [\hat{\nabla} \psi(\mathbf{r}, t)] \right) \\ &= -i\hbar [\hat{\nabla} \cdot \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t)] \psi(\mathbf{r}, t) \\ &= 0, \end{aligned} \quad (1.3.10)$$

1. En réalité, Eq. (1.3.6) entraîne à une dimension  $V(x) = ax + b$  et c'est parce que nous choisissons la condition  $V(x \rightarrow \pm\infty) = 0$  que  $V(x) = 0$  quelque soit  $x$ .

quelque soit la fonction d'onde  $\psi(\mathbf{r}, t)$ . Nous en concluons que dans cette jauge  $\mathbf{A}_\perp$  et  $\hat{\mathbf{p}}$  commutent, ce qui constitue l'intérêt majeur de la jauge de Coulomb. Le hamiltonien (1.3.9) s'écrit alors

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (1.3.11)$$

avec

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\hat{\mathbf{r}}), \quad (1.3.12a)$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\frac{q}{m} \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{q^2 \mathbf{A}_\perp^2(\hat{\mathbf{r}}, t)}{2m}. \quad (1.3.12b)$$

Le deuxième terme de  $\hat{H}_{\text{int}}$  ne contient pas l'opérateur  $\hat{\mathbf{p}}$ , ce qui a pour conséquence que les éléments de matrice entre deux états atomiques (terme non-diagonaux) sont nuls. En pratique, lorsque nous nous intéresserons aux transitions électroniques induites par la présence d'un champ électromagnétique, nous négligerons les termes non-linéaires en champ de telle sorte que

$$\hat{H}_{\text{int}} \approx -\frac{q}{m} \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) \cdot \hat{\mathbf{p}}. \quad (1.3.13)$$

### 1.3.1.3 Jauge de Göppert-Mayer et approximation des grandes longueurs d'ondes

Un deuxième choix de jauge possible est celui de Göppert-Mayer qui conduit au Hamiltonien dipolaire électrique  $\hat{H}_{\text{int}} \approx -\hat{\mathbf{D}} \cdot \mathbf{E}$ , pour des systèmes où il est possible de définir un moment dipolaire, ce qui est le cas des atomes ou des systèmes confinés comme les BQ. En revanche, pour des systèmes ayant au moins une direction grande, tels que les semiconducteurs massifs ou les puits quantiques, les approximations conduisant à ce hamiltonien ne sont plus valables et il est nécessaire de revenir à la forme  $\mathbf{A} \cdot \mathbf{p}$  de l'équation (1.3.13). La jauge de Göppert-Mayer se déduit de la jauge de Coulomb par la transformation de jauge (1.3.4a) et (1.3.4b) dans laquelle nous prenons [74]

$$F(\hat{\mathbf{r}}, t) = -(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) \cdot \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t), \quad (1.3.14)$$

où  $\mathbf{r}_0$  est la position du noyau de l'atome considéré ou de la BQ. Les potentiels vecteur et scalaire sont alors données dans la jauge de Göppert-Mayer par [74]

$$\mathbf{A}'(\hat{\mathbf{r}}, t) = \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) - \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t), \quad (1.3.15a)$$

$$U'(\hat{\mathbf{r}}, t) = (\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) \cdot \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t). \quad (1.3.15b)$$

Le hamiltonien dans cette jauge s'écrit donc

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} \left( \hat{\mathbf{p}} - q(\mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) - \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t)) \right)^2 + q(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0) \cdot \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t) + V(\hat{\mathbf{r}}). \quad (1.3.16)$$

En définissant l'opérateur dipolaire  $\hat{\mathbf{D}} = q(\hat{\mathbf{r}} - \mathbf{r}_0)$  et en remarquant que l'équation (1.3.3b) dans la jauge de Coulomb donne  $\mathbf{E}(\hat{\mathbf{r}}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t)$ , nous obtenons

$$\hat{H} = \frac{1}{2m} \left( \hat{\mathbf{p}} - q(\mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}, t) - \mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}_0, t)) \right)^2 - \hat{\mathbf{D}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t) + V(\hat{\mathbf{r}}). \quad (1.3.17)$$

Pour des tailles d'atomes ou de boîtes (1 – 10 nm) très petites devant la longueur d'onde des photons avec lesquels ils interagissent ( $\lambda \sim 920$  nm), nous pouvons considérer que le champ électromagnétique est essentiellement constant au niveau de la boîte. C'est l'approximation des grandes longueurs d'onde, qui permet d'écrire

$$\mathbf{A}_\perp(\mathbf{r}, t) \simeq \mathbf{A}_\perp(\hat{\mathbf{r}}_0, t). \quad (1.3.18)$$

Le hamiltonien du système se met donc finalement sous la forme  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{\text{int}}$  avec

$$\hat{H}_0 = \frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2m} + V(\hat{\mathbf{r}}), \quad (1.3.19a)$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\hat{\mathbf{D}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, t), \quad (1.3.19b)$$

qui est la forme du hamiltonien d'interaction lumière-matière dans l'approximation dipolaire électrique.

## 1.3.2 Excitation laser d'un système à deux niveaux : approche semi-classique

### 1.3.2.1 Hamiltonien et approximation de l'onde tournante

Nous étudions ici l'interaction entre une BQ modélisée par un système à deux niveaux (voir partie 1.2.3.2) séparés par une énergie  $\hbar\omega_X$  et un champ électrique monomode classique  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0(t) \cos(\omega_l t)$  comme schématisé Figure 1.14. La dépendance temporelle de  $\mathbf{E}_0(t)$  nous permettra par la suite de traiter le cas d'une excitation pulsée, l'excitation continue correspondant à une amplitude  $\mathbf{E}_0$  constante.

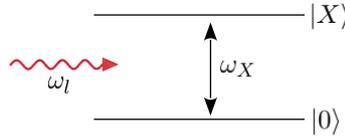


FIGURE 1.14 – Système à deux niveaux de pulsation de résonance  $\omega_X$  excité par un champ électromagnétique classique monomode de pulsation  $\omega_l$ .

Le hamiltonien du système  $\hat{H}_s$  es donné par

$$\begin{aligned} \hat{H}_s &= \hat{H}_{\text{QD}} + \hat{H}_{\text{int}} \\ &= -\frac{\hbar\omega_X}{2} \hat{\sigma}_z - \hat{\mathbf{D}} \cdot \mathbf{E}(t) \end{aligned} \quad (1.3.20)$$

où  $\hat{\mathbf{D}}$  est l'opérateur moment dipolaire défini dans la partie précédente et où  $\hat{\sigma}_z$  est une matrice de Pauli<sup>1</sup>. L'opérateur  $\hat{\mathbf{D}}$  étant impair, les éléments de matrice  $\langle 0|\hat{\mathbf{D}}|0\rangle$  et  $\langle X|\hat{\mathbf{D}}|X\rangle$  sont nuls et nous pouvons écrire

$$\hat{\mathbf{D}} = \begin{pmatrix} 0 & \mathbf{d} \\ \mathbf{d}^* & 0 \end{pmatrix}. \quad (1.3.21)$$

1. Nous rappelons que les matrices de Pauli sont données par

$$\hat{\sigma}_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \hat{\sigma}_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \hat{\sigma}_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

De plus, nous définissons les opérateurs destruction et création d'une paire électron-trou dans la boîte  $\hat{\sigma}$  et  $\hat{\sigma}^\dagger$  tels que  $|0\rangle = \hat{\sigma}|X\rangle$  et  $|X\rangle = \hat{\sigma}^\dagger|0\rangle$ , leurs représentations matricielles étant  $\hat{\sigma} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$  et  $\hat{\sigma}^\dagger = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$ . L'opérateur dipolaire s'écrit alors sous la forme

$$\hat{\mathbf{D}} = \mathbf{d}\hat{\sigma} + \mathbf{d}^*\hat{\sigma}^\dagger \quad (1.3.22)$$

et le hamiltonien  $\hat{H}_s$  donné Eq. (1.3.20) devient

$$\hat{H}_s = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z + \frac{\hbar}{2}(\Omega(t)\hat{\sigma} + \Omega^*(t)\hat{\sigma}^\dagger)(e^{i\omega_l t} + e^{-i\omega_l t}), \quad (1.3.23)$$

où  $\Omega(t) = -\mathbf{d}\cdot\mathbf{E}_0(t)/\hbar$  est la pulsation de Rabi. En représentation interaction (voir annexe A), l'équation de Schrödinger devient

$$i\hbar\frac{d|\tilde{\Psi}\rangle}{dt} = \hat{V}(t)|\tilde{\Psi}(t)\rangle \quad \text{avec} \quad |\tilde{\Psi}(t)\rangle = \hat{U}_0^\dagger(t)|\Psi(t)\rangle, \quad (1.3.24)$$

$$\hat{V} = \hat{U}_0^\dagger(t)\hat{V}\hat{U}_0(t),$$

où  $\hat{U}_0^\dagger(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0 t}$ . En utilisant le fait que  $\hat{\sigma}(t) = \hat{\sigma}e^{-i\omega_X t}$  et  $\hat{\sigma}^\dagger(t) = \hat{\sigma}^\dagger e^{i\omega_X t}$  nous montrons que

$$\hat{V} = \frac{\hbar}{2}\left(\Omega(t)\hat{\sigma}\left[e^{-i(\omega_X+\omega_l)t} + e^{-i(\omega_X-\omega_l)t}\right] + \Omega^*(t)\hat{\sigma}^\dagger\left[e^{i(\omega_X+\omega_l)t} + e^{i(\omega_X-\omega_l)t}\right]\right), \quad (1.3.25)$$

où nous pouvons constater l'existence de deux pulsations d'oscillation  $\omega_X - \omega_l$  et  $\omega_X + \omega_l$ . Proche de la résonance,  $\omega_X + \omega_l \gg \omega_X - \omega_l$  et pour des boîtes émettant à 920 nm nous avons  $\omega_X + \omega_l \approx 2\omega_X \sim 10^{15} \text{ s}^{-1}$ . La dynamique des termes en  $e^{-i(\omega_X+\omega_l)t}$  se fait donc sur un temps caractéristique de l'ordre de la femtoseconde, très rapide comparé à l'évolution temporelle du système sous excitation laser<sup>1</sup>. Nous négligerons donc ces termes dans l'expression (1.3.25) de  $\hat{V}$  : c'est l'approximation de l'onde tournante. En revenant en représentation Schrödinger, nous obtenons

$$\begin{aligned} \hat{V} &= \hat{U}_0(t)\hat{V}\hat{U}_0^\dagger(t) \\ &= \frac{\hbar}{2}\left(\Omega(t)\hat{\sigma}e^{i\omega_l t} + \Omega^*(t)\hat{\sigma}^\dagger e^{-i\omega_l t}\right) \end{aligned} \quad (1.3.26)$$

qui est l'expression que nous utiliserons pour connaître l'évolution temporelle du système considéré.

### 1.3.2.2 Équation maîtresse et équations de Bloch optiques

Dans cette partie, nous allons montrer que l'équation maîtresse, décrivant l'évolution temporelle du système, peut se mettre sous la forme d'un système de quatre équations couplées : les équations de Bloch optiques. L'équation maîtresse en représentation Schrödinger (voir annexe A) est de la forme

$$i\hbar\frac{d\hat{\rho}}{dt} = [\hat{H}_s, \hat{\rho}], \quad \text{avec} \quad \hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} \\ \rho_{21} & \rho_{22} \end{pmatrix} \quad (1.3.27)$$

1. En fait, en régime continu cette condition est vérifiée tant que  $|\Omega| \ll 2\omega_0$ . En régime pulsé, elle est toujours vérifiée puisque l'évolution du système se fait sur un temps caractéristique de l'ordre de la durée du pulse laser de l'ordre de la picoseconde.

la matrice densité du système à deux niveaux et où  $\rho_{12}^* = \rho_{21}$  et  $\rho_{11} + \rho_{22} = 1$ . Les indices 1 et 2 font référence aux états  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  respectivement. Nous avons vu dans la partie précédente [1.3.2.1](#) que  $\hat{H}_s$  est de la forme

$$\hat{H}_s = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z + \frac{\hbar}{2}\left(\Omega(t)\hat{\sigma}e^{i\omega_l t} + \Omega^*(t)\hat{\sigma}^\dagger e^{-i\omega_l t}\right), \quad (1.3.28)$$

et nous devons donc calculer les commutateurs suivant :

$$[\hat{\sigma}_z, \hat{\rho}] = \begin{pmatrix} 0 & 2\rho_{12} \\ -2\rho_{21} & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.3.29a)$$

$$[\hat{\sigma}, \hat{\rho}] = \begin{pmatrix} \rho_{21} & \rho_{22} - \rho_{11} \\ 0 & -\rho_{21} \end{pmatrix}, \quad (1.3.29b)$$

$$[\hat{\sigma}^\dagger, \hat{\rho}] = \begin{pmatrix} -\rho_{12} & 0 \\ \rho_{11} - \rho_{22} & \rho_{12} \end{pmatrix}. \quad (1.3.29c)$$

Nous obtenons alors un système de quatre équations couplées :

$$\begin{cases} i\hbar \frac{d\rho_{11}}{dt} = \frac{\hbar\Omega(t)}{2}e^{i\omega_l t}\rho_{21} - \frac{\hbar\Omega^*(t)}{2}e^{-i\omega_l t}\rho_{12}, \\ i\hbar \frac{d\rho_{12}}{dt} = -\hbar\omega_X\rho_{12} + \frac{\hbar\Omega(t)}{2}e^{i\omega_l t}(\rho_{22} - \rho_{11}), \\ i\hbar \frac{d\rho_{21}}{dt} = \hbar\omega_X\rho_{21} + \frac{\hbar\Omega^*(t)}{2}e^{-i\omega_l t}(\rho_{11} - \rho_{22}), \\ i\hbar \frac{d\rho_{22}}{dt} = -\frac{\hbar\Omega(t)}{2}e^{i\omega_l t}\rho_{21} + \frac{\hbar\Omega^*(t)}{2}e^{-i\omega_l t}\rho_{12}. \end{cases} \quad (1.3.30)$$

En utilisant le changement de variables :

$$\begin{aligned} \sigma_{11} &= \rho_{11}, & \sigma_{12} &= \rho_{12}e^{-i\omega_l t}, \\ \sigma_{21} &= \rho_{21}e^{i\omega_l t}, & \sigma_{22} &= \rho_{22}, \end{aligned} \quad (1.3.31)$$

nous pouvons réécrire le système d'équations [\(1.3.30\)](#) sous la forme des équations de Bloch optiques :

$$\begin{cases} i\frac{d\sigma_{11}}{dt} = \frac{1}{2}(\Omega(t)\sigma_{21} - \Omega^*(t)\sigma_{12}), \\ i\frac{d\sigma_{12}}{dt} = -(\omega_X - \omega_l)\sigma_{12} + \frac{\Omega(t)}{2}(\sigma_{22} - \sigma_{11}), \\ i\frac{d\sigma_{21}}{dt} = (\omega_X - \omega_l)\sigma_{21} + \frac{\Omega^*(t)}{2}(\sigma_{11} - \sigma_{22}), \\ i\frac{d\sigma_{22}}{dt} = -\frac{1}{2}(\Omega^*(t)\sigma_{12} - \Omega(t)\sigma_{21}). \end{cases} \quad (1.3.32)$$

Finalement, dans le cas d'une excitation résonante ( $\omega_X = \omega_l$ ), ces équations deviennent

$$\begin{cases} i\frac{d\sigma_{11}}{dt} = \frac{1}{2}(\Omega(t)\sigma_{21} - \Omega^*(t)\sigma_{12}), \\ i\frac{d\sigma_{12}}{dt} = \frac{\Omega(t)}{2}(\sigma_{22} - \sigma_{11}), \\ i\frac{d\sigma_{21}}{dt} = \frac{\Omega^*(t)}{2}(\sigma_{11} - \sigma_{22}), \\ i\frac{d\sigma_{22}}{dt} = -\frac{1}{2}(\Omega^*(t)\sigma_{12} - \Omega(t)\sigma_{21}). \end{cases} \quad (1.3.33)$$

### 1.3.2.3 Oscillation de Rabi

Pour connaître l'évolution du système en fonction du temps, nous dérivons la quatrième équation du système (1.3.33) et nous y injectons les deuxième et troisième équations. En utilisant le fait que  $\hat{\sigma}_{11} + \hat{\sigma}_{22} = 1$ , nous obtenons l'équation différentielle régissant l'évolution de la population de l'état excité

$$\frac{d^2 \sigma_{22}}{dt^2} + |\Omega(t)|^2 \sigma_{22} = \frac{|\Omega(t)|^2}{2}. \quad (1.3.34)$$

#### Excitation continue

Dans le cas d'une excitation laser continue, le champ électrique s'écrit  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \cos(\omega_l t)$  et l'amplitude du champ est indépendante de  $t$ . La pulsation de Rabi  $\Omega = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}_0 / \hbar$  est alors indépendante du temps et l'équation (1.3.34) devient une équation différentielle du second ordre à coefficients constants. La solution générale est de la forme

$$\sigma_{22}(t) = \frac{1}{2} + A \cos(|\Omega|t + \varphi), \quad (1.3.35)$$

où  $A$  et  $\varphi$  sont des constantes d'intégration. En supposant qu'à l'instant initial le système se trouve dans son état fondamental, c'est à dire que  $\hat{\rho}(t=0) = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$ , nous obtenons

$$\begin{aligned} \sigma_{22}(t) &= \frac{1}{2} \left[ 1 - \cos(|\Omega|t) \right] \\ &= \sin^2 \left( \frac{|\Omega|t}{2} \right). \end{aligned} \quad (1.3.36)$$

Ainsi, pour  $t$  tel que  $|\Omega|t = (2p+1)\pi$  le système se trouve dans l'état excité  $|X\rangle$  alors que si  $|\Omega|t = 2p\pi$  le système se trouve dans son état fondamental  $|0\rangle$ , comme représenté Figure 1.15. Le système oscille donc entre ces deux états, c'est l'oscillation de Rabi. Notons que le couplage à l'environnement, via l'existence d'un temps de vie de l'état excité, introduit un amortissement exponentiel de l'oscillation de Rabi comme nous le discuterons dans la partie 1.3.3.5.

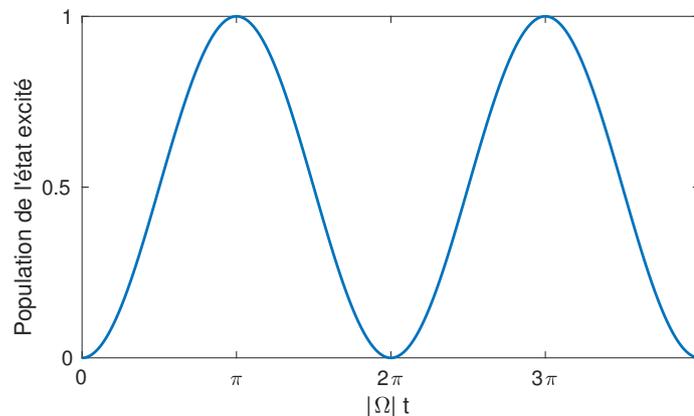


FIGURE 1.15 – Oscillation de Rabi sous excitation continue : le système oscille entre l'état fondamental  $|0\rangle$  et l'état excité  $|X\rangle$  avec une période  $1/|\Omega|$ .

### Régime impulsif

Nous venons de voir que pour une excitation laser continue, l'état du système peut être contrôlé parfaitement via le temps d'exposition au laser. Pour préparer le système à deux niveaux dans un état déterminé, il est également possible d'utiliser un laser impulsif délivrant des pulses laser de quelques picosecondes et dont la forme peut être modélisée par une fonction sécante hyperbolique. Dans ce cas, la pulsation de Rabi  $\Omega$  est une fonction de  $t$  et nous devons résoudre l'équation (1.3.34) qui est une équation différentielle du deuxième ordre à coefficients non constants pour laquelle il n'existe pas de solution analytique. Cependant, nous pouvons postuler un résultat approché<sup>1</sup> en s'inspirant du cas continu :

$$\sigma_{22}(t) = \sin^2 \left( \frac{\Theta(t)}{2} \right) \quad \text{avec} \quad \Theta(t) = \int_{-\infty}^t |\Omega(t')| dt' , \quad (1.3.37)$$

qui redonne bien Eq. (1.3.36) si  $\Omega$  est indépendante du temps, en considérant que l'interaction commence à l'instant  $t = 0$ . En notant  $\Theta_L = \lim_{t \rightarrow +\infty} \Theta(t)$  l'aire totale de l'impulsion laser, nous constatons que l'état du système après passage de l'impulsion est donné par

$$\sigma_{22} = \sin^2 \left( \frac{\Theta_L}{2} \right) \quad \text{avec} \quad \Theta_L = \int_{-\infty}^{+\infty} |\Omega(t')| dt' . \quad (1.3.38)$$

La résolution numérique des équations de Bloch optiques (1.3.33) permet d'obtenir l'évolution temporelle de la population de l'état excité que nous traçons (trait noir) Figure 1.16 pour des aires totales d'impulsion de  $\pi/2$ ,  $\pi$ ,  $2\pi$  et  $5\pi$ . Nous constatons que la solution coïncide avec le résultat de l'équation (1.3.38) utilisée par la suite, et que pour une impulsion d'aire  $\pi$ , le système se trouve après passage de l'impulsion dans l'état excité  $|X\rangle$ . Finalement, l'absence de prise en compte du temps de vie radiatif pendant l'interaction est justifiée : la perte de cohérence<sup>2</sup> se faisant sur un temps caractéristique de l'ordre de  $T_1$  de quelques centaines de picosecondes pour les boîtes InAs/GaAs, elle ne joue qu'un rôle minime pendant le temps de l'impulsion laser picoseconde. Nous remarquerons simplement que des expériences récentes [75] ont remis en cause cette approximation, comme nous pouvions nous y attendre pour des boîtes avec un temps de vie court et excitées par des pulses longs.

### 1.3.3 Couplage à l'ensemble des modes du champ électromagnétique, temps de vie et largeur de raie

Dans cette partie nous étudions un système à deux niveaux initialement dans son état excité et couplé à l'ensemble des modes du champ électromagnétique décrit ici quantiquement. Nous montrons en utilisant le formalisme de Lindblad présenté en annexe B que ce couplage entraîne l'existence d'un temps de vie fini de l'état excité et élargit la raie de luminescence. Nous prendrons le temps dans cette partie de démontrer l'ensemble de ces résultats, puisque ce formalisme sera aussi utilisé d'une manière similaire pour le calcul des processus de décohérence dus aux phonons acoustiques dans le chapitre 3, et qui constitue le sujet principal de cette thèse.

1. On peut vérifier que (1.3.37) n'est pas une solution exacte en l'injectant dans Eq. (1.3.34).

2. Dans le cas où aucun autre couplage à l'environnement n'est considéré, le temps de cohérence est uniquement limité par le temps de vie radiatif comme nous le montrerons dans la partie 1.3.3.7.

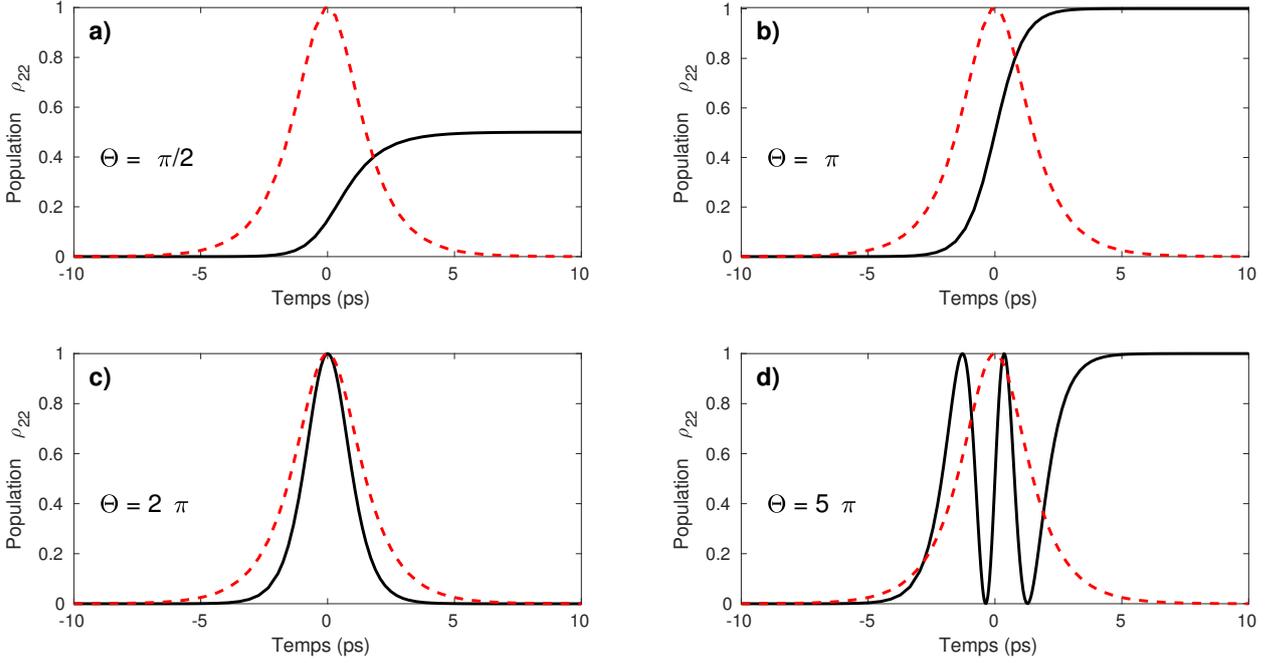


FIGURE 1.16 – Exemple d'oscillations de Rabi en régime impulsif pour des impulsions d'aire  $\Theta = \pi/2$  (a),  $\Theta = \pi$  (b),  $\Theta = 2\pi$  (c) et  $\Theta = 5\pi$  (d). Nous traçons l'évolution temporelle de la population de l'état excité (trait noir) ainsi que le pulse laser normalisé (pointillés rouges) pour une impulsion sécante hyperbolique de 3 ps de largeur à mi-hauteur.

### 1.3.3.1 Hamiltonien

Les processus de couplage au champ électromagnétique ont pour conséquence l'apparition d'un temps de vie de l'état excité, qui dans le cas des BQ InAs/GaAs est de l'ordre de la nanoseconde. L'excitation laser se faisant sur une durée de l'ordre de la picoseconde, nous considérerons dans la suite que le système à deux niveaux est, à l'instant initial, dans son état excité. Nous négligerons donc le terme de "Rabi" de la partie précédente (le deuxième de l'Eq. (1.3.23)), de telle sorte que

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{QD}} + \hat{H}_{\text{EM}} + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (1.3.39)$$

avec

$$\hat{H}_{\text{QD}} = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z, \quad (1.3.40a)$$

$$\hat{H}_{\text{EM}} = \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda}, \quad (1.3.40b)$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = -\hat{\mathbf{D}} \cdot \hat{\mathbf{E}}. \quad (1.3.40c)$$

L'expression de l'opérateur  $\hat{\mathbf{D}}$  est donné Eq. (1.3.22) où nous avons pris pour simplifier  $\mathbf{d} = \mathbf{d}^*$ ,

$$\hat{\mathbf{D}} = \mathbf{d}(\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger). \quad (1.3.41)$$

L'expression du champ électrique  $\hat{\mathbf{E}}$  à la position de la BQ prise en  $\mathbf{r}_0 = \mathbf{0}$  est donné par la quantification du champ électromagnétique [76], de telle sorte que

$$\hat{\mathbf{E}} = i \sum_{n,\lambda} \sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}} (\hat{a}_{n,\lambda} - \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger) \mathbf{e}_{n,\lambda}, \quad (1.3.42)$$

où  $L^3$  est le volume de quantification du champ électromagnétique,  $\mathbf{e}_{n,\lambda}$  est le vecteur polarisation du mode  $n$  qui est orthogonal au vecteur d'onde  $\mathbf{k}_n$ . Enfin,  $\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger$  et  $\hat{a}_{n,\lambda}$  sont les opérateurs création et annihilation d'un photon dans le mode  $\mathbf{k}_n$  avec la polarisation  $\lambda$ , vérifiant  $[\hat{a}_{n,\lambda}, \hat{a}_{n',\lambda'}^\dagger] = \delta_{n,n'}\delta_{\lambda,\lambda'}$ . Le hamiltonien d'interaction lumière-matière Eq.(1.3.40c) s'écrit donc

$$\hat{H}_{\text{int}} = \sum_{n,\lambda} f_{n,\lambda} (\hat{a}_{n,\lambda} - \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger) (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger), \quad (1.3.43)$$

avec  $f_{n,\lambda} = -i\sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}} (\mathbf{e}_{n,\lambda} \cdot \mathbf{d})$  le couplage du système à deux niveaux au mode  $n$  du champ de polarisation  $\lambda$ . Il est donc possible d'écrire le hamiltonien d'interaction sous une forme qui nous sera utile dans la suite,  $\hat{H}_{\text{int}} = \hat{A}\hat{B}$  avec

$$\hat{A} = (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger), \quad (1.3.44a)$$

$$\hat{B} = \sum_{n,\lambda} f_{n,\lambda} (\hat{a}_{n,\lambda} - \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger), \quad (1.3.44b)$$

où nous remarquons que  $\hat{A} = \hat{A}^\dagger$  et  $\hat{B} = \hat{B}^\dagger$ .

Il est intéressant de définir la densité spectrale de couplage au champ électromagnétique  $J_{EM}(\omega) = \sum_{n,\lambda} |f_{n,\lambda}|^2 \delta(\omega - \omega_n)$  qui caractérise le couplage entre la BQ et le champ [77]. Son calcul est réalisé dans l'annexe C.1 et donne

$$J_{EM}(\omega) = \frac{\hbar d^2 \omega^3}{6\pi^2 c^3 \varepsilon_0}. \quad (1.3.45)$$

### 1.3.3.2 Utilisation du formalisme de Lindblad

Nous allons maintenant appliquer le formalisme de Lindblad [78] présenté dans l'annexe B, en vérifiant que les conditions nécessaires à son application (voir partie B.4) sont bien satisfaites. Ici, le "petit" système, que nous nommerons  $s$ , est la BQ et le réservoir est le champ électromagnétique supposé dans son état fondamental : le vide électromagnétique. Le hamiltonien considéré ici a bien la forme voulue : un terme pour le système  $s$ , un terme pour le réservoir de photons et un terme d'interaction. La boîte perturbe de manière négligeable l'environnement car elle n'émet qu'un seul photon, ce qui justifiera le traitement du terme d'interaction dans l'approximation de Born. Nous poursuivons en identifiant les temps caractéristiques du système :

- le temps de relaxation de la boîte correspond à son temps de vie radiatif qui est de l'ordre de la nanoseconde, donc ici  $\tau_r = T_1 \sim 10^{-9}$  s
- le temps caractéristique lié à la fréquence de la transition de la boîte étudiée est  $\tau_s \sim 2\pi/\omega_X \sim 10^{-15}$  s puisque  $E_X \sim 1.3$  eV
- le temps de corrélation du réservoir  $\tau_B$  qui tend vers zéro dans le cas du vide électromagnétique [79] (voir la remarque en fin d'annexe C).

Comme  $\tau_B \ll \tau_r$  et  $\tau_s \ll \tau_r$ , les approximations Markovienne et séculaire sont justifiées. Enfin, la condition au temps initial (Eq. (B.3.10)) est bien vérifiée puisque  $\langle \hat{B} \rangle = 0$ .

### 1.3.3.3 Équation maîtresse en représentation interaction

Le formalisme de Lindblad permet d'écrire l'équation maîtresse pour la matrice densité réduite  $\hat{\rho}_s$  du système à deux niveaux en représentation interaction sous la forme

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = D[\hat{\rho}_s], \quad (1.3.46)$$

où<sup>1</sup>

$$D[\hat{\rho}_s] = \sum_{\omega} \gamma(\omega) \left[ \hat{A}(\omega) \hat{\rho}_s \hat{A}^\dagger(\omega) - \frac{1}{2} \{ \hat{A}^\dagger(\omega) \hat{A}(\omega), \hat{\rho}_s(t) \} \right], \quad (1.3.47a)$$

avec  $\{\hat{O}_1, \hat{O}_2\} = \hat{O}_1 \hat{O}_2 + \hat{O}_2 \hat{O}_1$  le crochet de Poisson de  $\hat{O}_1$  et  $\hat{O}_2$ . Les opérateurs  $\hat{A}(\omega)$  sont les opérateurs propres de  $\hat{H}_{QD}$  qui vérifient  $[\hat{H}_{QD}, \hat{A}(\omega)] = \lambda(\omega) \hat{A}(\omega)$  avec  $\lambda(\omega) \in \mathbb{C}$ . Ils sont de la forme

$$\hat{A}(\omega) = \sum_{\hbar\omega = \epsilon' - \epsilon} \hat{\Pi}(\epsilon) \hat{A} \hat{\Pi}(\epsilon'), \quad (1.3.48)$$

où  $\hat{\Pi}(\epsilon)$  est le projecteur sur le sous-espace propre associé à la valeur propre  $\epsilon$  de  $\hat{H}_{QD}$ . Le coefficient  $\gamma(\omega)$  est donné par

$$\gamma(\omega) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}^\dagger(s) \hat{B}(0) \rangle, \quad (1.3.49)$$

avec

$$\hat{B}(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{EM} t} \hat{B} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{EM} t}. \quad (1.3.50)$$

Nous constatons que  $\gamma(\omega)$  est proportionnel à la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du réservoir  $\mathcal{C}_{EM}(t) = \langle \hat{B}^\dagger(t) \hat{B}(0) \rangle$  calculée dans l'annexe C.

Dans le cas d'un système à deux niveaux, il n'existe que deux sous-espaces propres et la différence des énergies propres ne peut prendre que trois valeurs  $\omega = 0, \pm\omega_X$ . Nous obtenons donc les trois opérateurs propres de  $\hat{H}_{QD}$ , qui s'écrivent en définissant  $\hat{\Pi}_0$  et  $\hat{\Pi}_X$  les projecteurs associés aux énergies propres  $-\hbar\omega_X/2$  et  $+\hbar\omega_X/2$ ,

$$\hat{A}(\omega_X) = \hat{\Pi}_0 (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger) \hat{\Pi}_X = \hat{\sigma}, \quad (1.3.51a)$$

$$\hat{A}(-\omega_X) = \hat{\Pi}_X (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger) \hat{\Pi}_0 = \hat{\sigma}^\dagger, \quad (1.3.51b)$$

$$\hat{A}(0) = \hat{\Pi}_X (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger) \hat{\Pi}_X + \hat{\Pi}_0 (\hat{\sigma} + \hat{\sigma}^\dagger) \hat{\Pi}_0 = 0. \quad (1.3.51c)$$

En utilisant les expressions des opérateurs  $\hat{A}(\omega)$  obtenues précédemment, nous avons finalement

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = D[\hat{\rho}_s] \quad \text{avec} \quad D[\hat{\rho}_s] = \gamma(\omega_X) \mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + \gamma(-\omega_X) \mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger}[\hat{\rho}_s], \quad (1.3.52)$$

où  $\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \hat{O} \hat{\rho}_s \hat{O}^\dagger - \frac{1}{2} \{ \hat{O}^\dagger \hat{O}, \hat{\rho}_s \}$  est l'opérateur de Lindblad et où  $\gamma(\omega)$  est donné Eq. (1.3.49) et est explicitement calculé dans la partie suivante.

1. Les indices  $\alpha$  et  $\beta$  introduit dans l'annexe B ont disparu grâce à la forme simple du hamiltonien d'interaction défini Eq. (1.3.44).

### 1.3.3.4 Équation maîtresse en représentation Schrödinger

Nous allons dans cette partie commencer par exprimer l'équation maîtresse en représentation Schrödinger puisque les calculs de valeurs moyennes d'opérateurs en représentation Heisenberg font apparaître la matrice densité en représentation Schrödinger (voir l'annexe F.1 pour une discussion plus détaillée). Par la suite, nous calculerons les coefficients  $\gamma(\pm\omega_X)$  apparaissant dans l'équation maîtresse (1.3.52) et définis Eq. (1.3.49).

Pour revenir à la représentation Schrödinger pour l'équation (1.3.52), nous utilisons l'expression de la matrice densité en représentation interaction  $\hat{\rho}_s = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}\hat{\rho}_s e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}$  (voir annexe A) qui donne

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_{QD}, \hat{\rho}_s] + \gamma(\omega_X)e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s]e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t} + \gamma(-\omega_X)e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger}[\hat{\rho}_s]e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}. \quad (1.3.53)$$

En remarquant que

$$e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s]e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t} = \mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s], \quad (1.3.54a)$$

$$e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger}[\hat{\rho}_s]e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{QD}t} = \mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger}[\hat{\rho}_s], \quad (1.3.54b)$$

nous obtenons l'équation maîtresse en représentation Schrödinger,

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_{QD}, \hat{\rho}_s] + \gamma(\omega_X)\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + \gamma(-\omega_X)\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger}[\hat{\rho}_s]. \quad (1.3.55)$$

Le calcul des coefficients  $\gamma(\pm\omega_X)$  se fait grâce aux équations (1.3.49) et (C.2.8) qui donnent

$$\begin{aligned} \gamma(\omega) &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}^\dagger(s) \hat{B}(0) \rangle \\ &= \frac{d^2}{6\pi^2 \hbar c^3 \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} d\tilde{\omega} \tilde{\omega}^3 \int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{i(\omega - \tilde{\omega})s} \\ &= \frac{d^2}{3\pi \hbar c^3 \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} d\tilde{\omega} \tilde{\omega}^3 \delta(\omega - \tilde{\omega}), \end{aligned} \quad (1.3.56)$$

où nous avons utilisé  $\int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{-i(\omega - \tilde{\omega})s} = 2\pi\delta(\omega - \tilde{\omega})$ . Nous avons donc finalement

$$\gamma(\omega_X) = \frac{d^2 \omega_X^3}{3\pi \hbar c^3 \varepsilon_0}, \quad (1.3.57a)$$

$$\gamma(-\omega_X) = 0. \quad (1.3.57b)$$

En notant  $\Gamma = \gamma(\omega_X)$ , l'équation maîtresse en représentation Schrödinger (1.3.55) devient

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_{QD}, \hat{\rho}_s] + \Gamma \mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s], \quad (1.3.58)$$

où  $\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \hat{\sigma}\hat{\rho}_s\hat{\sigma}^\dagger - \frac{1}{2}\{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}, \hat{\rho}_s\}$ .

### 1.3.3.5 Temps de vie de l'état excité

Comme précédemment, considérons un système initialement dans son état excité. Nous allons déterminer l'évolution temporelle de la population de l'état excité, en résolvant l'équation maîtresse (1.3.58) obtenue précédemment. En définissant les coefficients de  $\hat{\rho}_s$  comme dans Eq. (1.3.27),

nous avons

$$[\hat{\sigma}_z, \hat{\rho}_s] = \begin{pmatrix} 0 & 2\rho_{12} \\ -2\rho_{21} & 0 \end{pmatrix}, \quad (1.3.59a)$$

$$\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \begin{pmatrix} \rho_{22} & -\rho_{12}/2 \\ -\rho_{21}/2 & -\rho_{22} \end{pmatrix}. \quad (1.3.59b)$$

En injectant ces résultats dans l'équation. (1.3.58), nous obtenons les équations régissant l'évolution de la matrice densité :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} + \Gamma\rho_{11} = \Gamma, \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} - i\omega_X\right)\rho_{12} = 0, \\ \frac{d\rho_{21}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} + i\omega_X\right)\rho_{21} = 0, \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} + \Gamma\rho_{22} = 0. \end{cases} \quad (1.3.60)$$

Puisqu'à l'instant initial le système se trouve dans l'état excité, c'est-à-dire  $\rho_{22}(0) = 1$ , la dernière équation donne

$$\rho_{22}(t) = e^{-\Gamma t}, \quad (1.3.61)$$

ce qui met en évidence une décroissance exponentielle de la population de l'état excité pour un système à deux niveaux uniquement couplé au champ électromagnétique en espace libre. À partir de l'expression obtenue Eq. (1.3.57a) pour  $\gamma(\omega_X)$  nous pouvons faire une estimation du temps de vie de l'état excité. Sachant que les BQ InAs ont un moment dipolaire de 10-100 Debye [80], nous obtenons une valeur de  $T_1 = 1/\Gamma \approx 10$  ns qui est supérieur d'un ordre de grandeur des valeurs obtenues expérimentalement qui se trouvent autour de la nanoseconde.

**Remarque sur le cas d'une excitation continue :**

Nous avons supposé jusqu'à présent que le système à deux niveaux est, à l'instant initial, dans son état excité et que le terme semi-classique d'interaction avec le laser résonant est nul (deuxième terme de l'Eq. (1.3.23)). Dans le cas d'une excitation laser continue, ces hypothèses ne sont plus valables. Il faut écrire le hamiltonien de la boîte sous la forme (1.3.28) qui, en se plaçant dans le référentiel tournant du laser et sous excitation strictement résonante, devient  $\hat{H}_{QD} = \frac{\Omega}{2}\hat{\sigma}_x$ . Ses vecteurs propres sont  $|\pm\rangle = (|0\rangle \pm |X\rangle)/\sqrt{2}$ . Comme  $|-\rangle$  est l'état de plus basse énergie, le taux de recombinaison radiative calculé précédemment dans le formalisme de Lindblad correspond maintenant à la transition  $|+\rangle \rightarrow |-\rangle$ , ce qui entraîne que l'état final du système est une combinaison linéaire de  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$ . Nous retrouvons ici le fait qu'en régime continu, l'oscillation de Rabi est amortie sur un temps caractéristique  $T_1$  et que l'état propre est combinaison linéaire des états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$  [78].

**1.3.3.6 Profil Lorentzien des raies d'émission**

Nous allons montrer qu'un système à deux niveaux uniquement couplé au champ électromagnétique a un profil spectral Lorentzien de largeur à mi-hauteur  $\Gamma = 1/T_1$ . Nous montrons dans

l'annexe D que le champ émis par une BQ, couplé uniquement au champ électromagnétique, est de la forme

$$\hat{\mathbf{E}}_{QD}(t) = \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t) + \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t), \quad (1.3.62)$$

avec

$$\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) = \left( \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t) \right)^\dagger = K \hat{\sigma}^\dagger(t) \mathbf{e}, \quad (1.3.63)$$

où  $K$  est une constante,  $\mathbf{e}$  le vecteur unitaire caractérisant la polarisation de l'émission de la BQ, et  $\hat{\sigma}^\dagger(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \hat{\sigma}^\dagger e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H} t}$  l'opérateur création d'une excitation dans la boîte en représentation Heisenberg.

Le théorème de Wiener-Khinchin optique [81, 82], présenté dans l'annexe E, permet de relier le champ électrique émis par un dipôle, à la densité spectrale d'énergie  $S(\omega)$ , c'est-à-dire au spectre détecté par des appareils de mesure. Le théorème donne (dans sa version alternative, voir annexe E.4),

$$S(\omega) = \mathcal{S}(\omega) + \mathcal{S}^*(\omega) \quad \text{avec} \quad \mathcal{S}(\omega) = \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \left\langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t + \tau) \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t) \right\rangle e^{-i\omega\tau}, \quad (1.3.64)$$

qui devient en utilisant Eq. (1.3.63),

$$\mathcal{S}(\omega) = |K|^2 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{\sigma}^\dagger(t + \tau) \hat{\sigma}(t) \rangle e^{-i\omega\tau}. \quad (1.3.65)$$

La fonction de corrélation  $\langle \hat{\sigma}^\dagger(t + \tau) \hat{\sigma}(t) \rangle$  est calculée dans l'annexe F en utilisant le théorème de la régression quantique [78, 81], et nous obtenons

$$\langle \hat{\sigma}^\dagger(t + \tau) \hat{\sigma}(t) \rangle = e^{i\omega_X \tau} e^{-\Gamma t - \frac{\Gamma}{2} \tau}. \quad (1.3.66)$$

Nous avons alors

$$\mathcal{S}(\omega) = \frac{|K|^2}{\Gamma} \frac{1}{\frac{\Gamma}{2} - i(\omega_X - \omega)}, \quad (1.3.67)$$

et nous obtenons le profil spectral pour l'émission de la boîte

$$\begin{aligned} S(\omega) &= \mathcal{S}(\omega) + \mathcal{S}^*(\omega) \\ &= \frac{A}{1 + \left( \frac{2(\omega - \omega_X)}{\Gamma} \right)^2}, \end{aligned} \quad (1.3.68)$$

où nous avons posé  $A = 4|K|^2/\Gamma^2$ . Nous retrouvons bien la forme Lorentzienne des raies de luminescence avec  $\Gamma = 1/T_1$  la largeur à mi-hauteur.

### 1.3.3.7 Temps de cohérence d'un système à deux niveaux

Le temps de cohérence des photons émis par une BQ correspond au temps caractéristique pendant lequel un photon émis est cohérent avec lui même, c'est-à-dire au temps pendant lequel ce photon peut interférer avec lui même. Ce genre de mesure est réalisée en utilisant un interféromètre de Michelson dont les détails expérimentaux seront présentés dans la partie 2.3.5.

Le profil d'intensité de deux ondes cohérentes de pulsation  $\omega$ , d'intensité  $I_0$  et dont la différence de chemin optique vaut  $\delta$ , est de la forme

$$I(\omega) = 2I_0 \left[ 1 + \cos \left( \frac{\omega\delta}{c} \right) \right], \quad (1.3.69)$$

où  $c$  est la vitesse de la lumière. Dans le cas d'une BQ, nous venons de montrer que la distribution en énergie de la luminescence émise est une Lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $\Gamma$ , centrée en  $\omega_X$ , de telle sorte que la distribution (normalisée) en énergie s'écrit

$$\mathcal{P}(\omega) = \frac{2/\pi\Gamma}{1 + \left( \frac{2(\omega - \omega_X)}{\Gamma} \right)^2}. \quad (1.3.70)$$

La figure d'interférence totale est alors de la forme

$$I = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega)\mathcal{P}(\omega)d\omega, \quad (1.3.71)$$

où l'intégrale a été étendue aux fréquences négatives pour la commodité du calcul. Cette intégrale se calcule en utilisant le théorème des résidus et nous obtenons après intégration

$$I = 2I_0 \left[ 1 + e^{-\Gamma t/2} \cos \left( \frac{2\pi}{\lambda_X} ct \right) \right], \quad (1.3.72)$$

avec  $t = \delta/c$  le délai entre les deux voies de l'interféromètre. Le contraste des interférences est alors donné par  $C(t) = e^{-\Gamma t/2}$  et nous constatons qu'il décroît sur un temps caractéristique  $T_2 = 2/\Gamma = 2T_1$ . Nous venons donc de montrer que le couplage au champ électromagnétique impose une limite supérieure à la cohérence des photons émis par une BQ égale à deux fois le temps de vie radiatif.

Nous remarquerons de plus que le calcul complet met en évidence le fait que le contraste de la figure d'interférence correspond à la transformée de Fourier de la raie de luminescence, d'où le nom de spectroscopie par transformée de Fourier.

## 1.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le système que nous étudierons tout au long de cette thèse, à savoir une BQ auto-organisée InAs/GaAs en interaction avec la lumière. Nous avons vu qu'en raison du confinement des porteurs dans les trois directions de l'espace, leur énergie est quantifiée, ce qui confère aux BQ des propriétés particulières, notamment lors de leur interaction avec la lumière. Nous avons également introduit le concept de paire électron-trou, quasi-particule formée d'un électron dans la bande de conduction et d'un trou dans la bande de valence. Nous avons rappelé que, si dans le cas d'un semiconducteur massif c'est l'interaction coulombienne qui lie cette quasi-particule qui s'appelle alors exciton, dans le cas d'une BQ c'est le potentiel de confinement qui est dominant et il faut alors simplement parler de paires électron-trou (corrélées).

Dans un deuxième temps, nous avons étudié le couplage entre une BQ modélisée comme un système à deux niveaux et la lumière. Nous avons commencé par montrer que cette interaction peut être décrite par le hamiltonien d'interaction dipolaire en se plaçant dans la jauge de Göppert-Mayer. Nous avons ensuite considéré l'interaction d'une BQ avec une excitation laser résonante

traitée classiquement et nous avons montré qu'en régime impulsionnel l'état du système à deux niveaux peut être contrôlé de manière déterministe grâce à la puissance du laser utilisé. Enfin, nous avons considéré l'interaction entre un système à deux niveaux initialement dans son état excité et l'ensemble des modes du champ électromagnétique et nous avons mis en évidence l'existence d'un temps de vie fini de l'état excité. Nous avons aussi montré que ce couplage conduit à une forme Lorentzienne des raies de luminescence ainsi qu'à l'existence d'un temps de cohérence pour les photons émis.

## Chapitre 2

# Excitation résonante de boîtes uniques et dispositif expérimental

---

**Sommaire**


---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>57</b>
<b>2.2</b>	<b>Excitation résonante : une étude propre se paie cher</b>	<b>57</b>
2.2.1	Intérêts de l'excitation résonante	57
2.2.2	Difficultés de l'excitation résonante	59
2.2.3	Structure des échantillons	60
2.2.3.1	Échantillon non dopé	61
2.2.3.2	Échantillon dopé	63
2.2.4	Montage expérimental pour l'excitation résonante de boîtes quantiques	66
2.2.4.1	Source laser et excitation des BQ	67
2.2.4.2	Cryostat	70
2.2.4.3	Microscopie confocale	70
2.2.5	Utilisation d'un laser non résonnant pour retrouver l'émission résonante	71
<b>2.3</b>	<b>Caractérisation de l'émission d'une boîte quantique</b>	<b>72</b>
2.3.1	Spectres de photoluminescence et oscillation de Rabi	72
2.3.2	Polarisation de l'émission d'une boîte quantique	73
2.3.3	Statistique d'émission	74
2.3.4	Mesure du temps de vie radiatif	76
2.3.5	Mesure du temps de cohérence	77
2.3.6	Mesure de l'indiscernabilité des photons émis	80
<b>2.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>83</b>

---

## 2.1 Introduction

Nous nous proposons dans cette partie de décrire et de donner les intérêts du dispositif expérimental utilisé durant cette thèse pour l'étude résonante de boîtes quantiques (BQ) uniques. L'intégralité des mesures ont été réalisées optiquement, c'est-à-dire par l'utilisation d'une excitation laser combinée à la détection de la photoluminescence. Nous avons également développé des échantillons contactés électriquement, afin d'appliquer de manière contrôlée un champ électrique le long de l'axe de croissance des structures.

Nous commencerons par mettre en évidence les intérêts de l'excitation résonante et les difficultés expérimentales qui lui sont propres, puis nous décrirons la structure particulière des échantillons étudiés qui nous a permis de dépasser ces difficultés. Nous nous intéresserons ensuite au dispositif expérimental de photoluminescence permettant d'étudier des BQ uniques. Pour finir, nous passerons en revue les différentes techniques expérimentales nous permettant de caractériser l'émission d'une BQ : étude de la polarisation, mesure de la statistique d'émission, mesure du temps de vie et du temps de cohérence et enfin, caractérisation de l'indiscernabilité des photons émis.

## 2.2 Excitation résonante : une étude propre se paie cher

### 2.2.1 Intérêts de l'excitation résonante

Nous avons vu dans la partie 1.2 qu'une BQ possède un spectre discret en énergie dû au confinement des porteurs dans les trois directions de l'espace. Son spectre de photoluminescence présente en conséquence des raies fines associées aux transitions possibles entre différents niveaux d'énergie. Dans notre cas, la luminescence est obtenue en excitant optiquement les BQ grâce à un laser accordable en énergie et nous reviendrons sur les caractéristiques de ce laser d'excitation dans la partie 2.2.4.1. Dans le cas où l'énergie du laser est plus grande que l'énergie des transitions observées (Figure 2.1 (a)), nous parlons d'excitation non-résonante. Dans le cas où l'énergie du laser coïncide exactement avec l'énergie d'une transition de la BQ étudiée (Figure 2.1 (b)), nous parlons d'excitation résonante. Si la première observation de la luminescence de BQ a été réalisée en 1994 par J. Y. Marzin *et al* [24], il a fallu attendre les travaux de Muller *et al* [34] en 2007 et de Melet *et al* [42] en 2008 pour que leur étude sous excitation résonante soit publiée. Nous nous proposons dans cette partie de discuter les intérêts de l'excitation résonante.

Commençons par nous intéresser à une paire électron-trou créée lors d'une excitation non-résonante comme schématisé Figure 2.1 (a). La longueur d'onde du laser utilisé étant autour de 870 nm et correspondant à une excitation dans la couche de mouillage, la paire électron-trou est créée dans les barrières et met un temps  $\tau_{\text{cap}} \sim 1 - 5$  ps avant d'être "capturée" par la BQ [83, 84]. La deuxième étape, avant que la paire électron-trou puisse se recombiner radiativement en émettant un photon d'énergie  $\hbar\omega_0$ , est la relaxation des porteurs des états excités de la BQ vers l'état excité de plus basse énergie : un électron et un trou dans les états de plus basse énergie des bandes de conduction et de valence respectivement. Siegert *et al* [84] ont montré expérimentalement que ce temps de relaxation  $\tau_{\text{rel}}$  est du même ordre de grandeur que  $\tau_{\text{cap}}$  ce qui entraîne que le temps total que met la paire électron-trou entre le moment où elle est photo-créeée dans la barrière et le moment où elle se retrouve dans l'état excité de plus basse énergie de la BQ est de l'ordre de la dizaine de

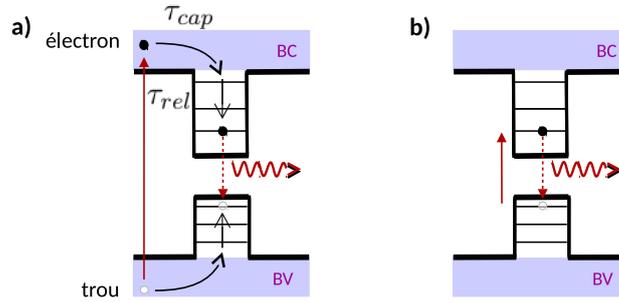


FIGURE 2.1 – (a) Processus de relaxation d’une paire électron-trou créée sous excitation non-résonante. La paire est photocréée dans les barrières, les porteurs sont capturés dans la BQ, ils relaxent non radiativement jusque dans l’état excité de plus basse énergie et finalement, se recombinent radiativement en émettant un photon d’énergie  $\hbar\omega_0$ . (b) Sous excitation résonante, la paire électron-trou est directement créée dans l’état excité de plus basse énergie de la boîte.

picosecondes. De plus, une excitation non-résonante crée en général plusieurs paires électron-trou qui vont par la suite être capturées par la BQ. Un photon ne pourra donc être émis à l’énergie  $\hbar\omega_0$  que lorsque la dernière paire électron-trou présente dans la boîte se recombine. A l’inverse, une excitation laser résonante ne crée qu’une seule paire électron-trou directement dans l’état excité de plus basse énergie de la boîte, paire qui peut a priori se recombina instantanément si on ne tient pas compte du temps de vie de l’état considéré.

La différence majeure entre ces deux types d’excitation réside donc dans le fait que dans le cas non-résonant la paire électron-trou sonde son environnement (barrières, niveaux excités de la boîte, présence d’autres paires électron-trou) avant de se retrouver dans l’état où elle est en mesure de se recombina en émettant un photon à l’énergie  $\hbar\omega_0$ . La Figure 2.2 présente des mesures de temps de vie (a) et de temps de cohérence (b) des photons émis par une BQ sous excitation résonante (noir) et non-résonante (rouge)[45]. Nous reviendrons dans les parties 2.3.4 et 2.3.5 sur les détails expérimentaux pour la réalisation de ces expériences. Pour la mesure du temps de vie nous constatons que le maximum de corrélation est décalé de près d’une nanoseconde, ce qui a été interprété par Elvira *et al* [85] comme dû à la présence de plus d’une paire électron-trou dans la boîte. En ce qui concerne les mesures de temps de cohérence, nous constatons clairement que le temps de cohérence sous excitation non-résonante ( $T_2^{\text{NR}}$ ) est inférieur à celui sous excitation résonante ( $T_2^{\text{R}}$ ), ce qui confirme que les processus de capture et relaxation de la paire électron-trou détruisent la cohérence des photons émis.

Nous avons donc deux intérêts à réaliser une étude sous excitation résonante. Premièrement, afin que le degré d’indiscernabilité des photons émis successivement par la BQ soit le plus grand possible, pour des applications en information quantique ou pour étudier d’autres phénomènes physiques reliés à la perte d’indiscernabilité (voir chapitre 3). Ensuite, parce que si nous souhaitons utiliser un modèle microscopique pour décrire théoriquement les phénomènes observés, le traitement des processus de relaxation rend le problème bien plus compliqué. Dans la suite de cette partie nous nous intéresserons aux difficultés expérimentales liées à l’excitation résonante et nous donnerons

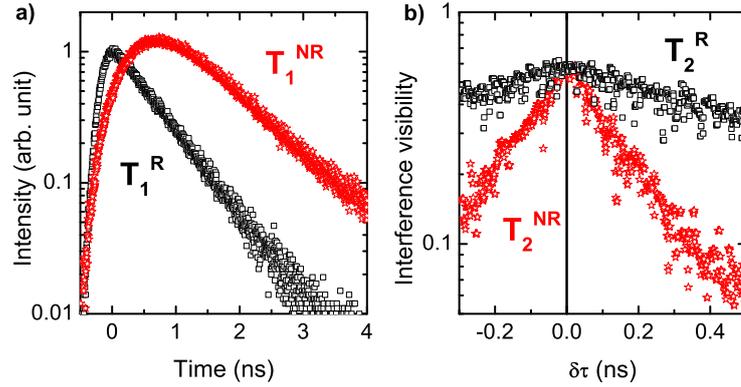


FIGURE 2.2 – Données extraites de [45]. (a) Mesure de temps de vie sous excitation résonante  $T_1^R = 670$  ns (carrés noirs) et non-résonante  $T_1^{NR} = 850$  ns (étoiles rouges). (b) Mesure de temps de cohérence sous excitation résonante  $T_2^R = 950$  ns (carrés noirs) et non-résonante  $T_2^{NR} = 200$  ns (étoiles rouges).

les détails expérimentaux qui ont permis d’obtenir les résultats présentés dans ce manuscrit, en commençant par l’élaboration des échantillons puis en décrivant le montage optique utilisé.

### 2.2.2 Difficultés de l’excitation résonante

Comme mentionné précédemment, notre objectif est d’adresser de manière résonante une BQ unique. Pour ce faire, nous pourrions envisager d’utiliser une configuration de photo-luminescence ”usuelle” (schématisée Figure 2.3 (a)) où l’objectif d’excitation sert aussi d’objectif de détection. Pour des expériences non-résonantes, ce montage présente l’avantage d’être particulièrement simple et la luminescence de la BQ étudiée peut être séparée des photons du laser par l’utilisation d’un simple spectromètre. Ce n’est plus le cas lors d’une excitation résonante puisque le laser d’excitation se trouve exactement à la même longueur d’onde que celle des photons émis par la BQ. Ceci constitue un problème majeur puisqu’une BQ est une source de photons uniques alors que le nombre moyen de photons contenus dans un pulse d’excitation laser est  $N_{1 \text{ pulse}} = \lambda P_{\text{las}} / hc\nu_{\text{rep}} \sim 5 \cdot 10^4$ . Dans l’expression précédente,  $\lambda = 920$  nm est la longueur d’onde du laser pour une excitation résonante,  $P_{\text{las}} \sim 10 \mu\text{W}$  est la puissance du laser mesuré avant l’objectif de microscope et  $\nu_{\text{rep}} = 82$  MHz est le taux de répétition du laser. Nous constatons donc que nous pouvons nous attendre à avoir 4 ou 5 ordres de grandeurs entre le nombre de photons émis par la boîte et le nombre de photons laser, ce qui rend impossible une étude résonante avec un tel système expérimental.

Pour surpasser cette difficulté, plusieurs solutions sont envisageables. La première consiste à conserver la même géométrie mais à faire une sélection en polarisation de la luminescence : la détection se fait dans une polarisation orthogonale à l’excitation. Cette méthode (voir Figure 2.3 (b) tirée de la ref. [86]) est utilisée par de nombreux groupes à l’heure actuelle (ceux de A. Imamoglu à l’ETH à Zurich, P. Senellart au C2N à Saclay, J.-W. Pan à Shanghai ou encore celui de M. Atatüre à Cambridge). Il présente l’avantage de ne nécessiter qu’un montage expérimental très simple, la seule contrainte étant d’utiliser un polariseur de haute qualité (facteur d’extinction autour de  $10^8$ ) et un réglage fin. Cependant, plusieurs inconvénients sont à prendre en compte. Premièrement, la confi-

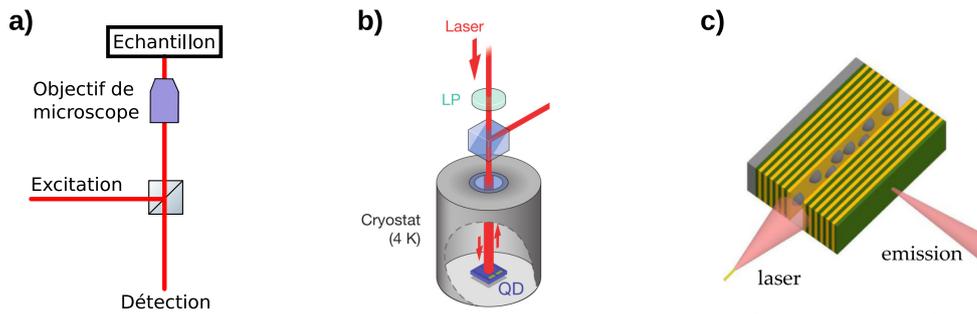


FIGURE 2.3 – (a) Schéma expérimental d'un montage de photoluminescence classique, le même objectif de microscope sert à la fois pour l'excitation et la détection. (b, c) Schéma expérimental d'un montage pour l'étude résonante de BQ avec sélection en polarisation (b) [86] et sélection spatiale (c) [87] de la luminescence résonante.

guration excitation/détection impose généralement de perdre la moitié du signal de luminescence, ce qui peut être critique pour des BQ peu brillantes. Deuxièmement, la sélection en polarisation fait perdre toutes les informations sur la polarisation de la luminescence émise et donc sur le système étudié. La deuxième stratégie pour réaliser une expérience sous excitation résonante est de réaliser l'excitation de la BQ et la détection de la luminescence émise dans deux directions orthogonales (voir Figure 2.3 (c) tirée de la ref. [87]). Cette technique est utilisée par exemple dans les groupes de C. Diederichs au LPA à Paris, de G. S. Solomon à l'université de Maryland ou de P. Michler à Stuttgart et permet de s'affranchir du laser d'excitation, tout en préservant l'intensité, et l'information sur la polarisation de l'émission de la BQ étudiée. En réalité, la principale limitation de cette méthode est qu'il existe toujours une partie de laser diffusé collectée par l'objectif de détection et qui vient ajouter un "fond" au signal provenant de la BQ.

Dans notre équipe, nous avons été parmi les premiers groupes à utiliser une géométrie originale d'optique guidée pour découpler spatialement l'excitation laser et la détection de la luminescence. Nous décrivons dans la partie suivante la structure des échantillons utilisés pendant ces travaux de thèse.

### 2.2.3 Structure des échantillons

Comme mentionné précédemment, l'équipe dans laquelle j'ai réalisé ma thèse a fait le choix d'utiliser une géométrie guidée (unidimensionnelle) pour être en mesure d'étudier des BQ sous excitation résonante. Pour ce faire, la stratégie est de faire croître un plan de BQ InAs (comme discuté dans la partie 1.2.2.4) dans un guide d'onde planaire et de graver des rubans micrométriques permettant d'obtenir le confinement de l'excitation laser dans une direction. Ce guide d'onde est réalisé par une cavité à miroirs de Bragg dans la direction de croissance, qui permet par ailleurs de maximiser l'émission dans la direction de collection de la luminescence et donc de maximiser le signal détecté. Nous allons dans la suite décrire rapidement les deux types d'échantillons utilisés pendant ce travail de thèse en commençant par les échantillons non-dopés sur lesquels ont été réalisées les mesures d'indiscernabilité permettant l'étude de l'interaction électron-phonon (voir chapitre 3). Nous nous

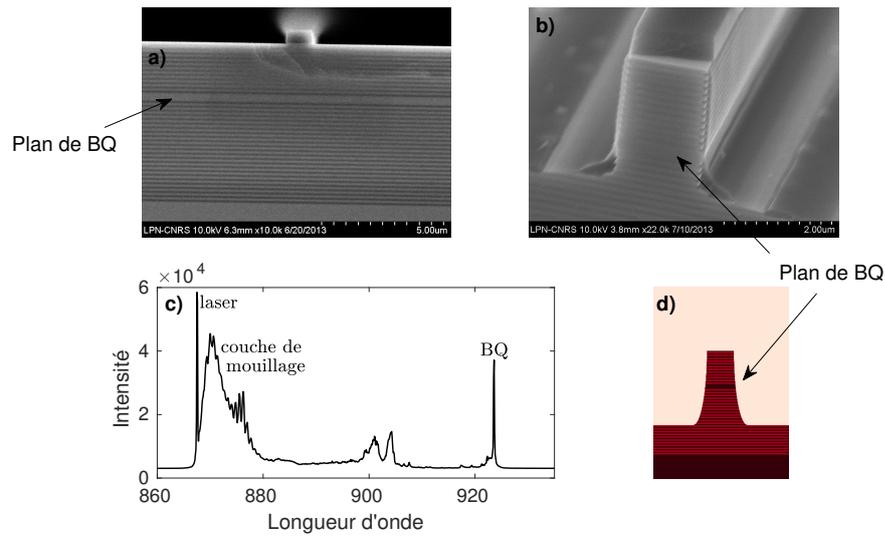


FIGURE 2.4 – Image MEB de l'échantillon S1 avant (a) et après (b) gravure. Nous pouvons voir sur la première image la résine qui sert de masque à la gravure. Après gravure, nous constatons que l'interface gravée est en forme de dents de scie (dues à l'alternance de composition des miroirs de Bragg) probablement responsable d'une augmentation du laser diffusé. (c) Spectre de photoluminescence d'une BQ de l'échantillon S1 sous excitation non-résonante. (d) Schéma d'une coupe transversale de l'échantillon S1.

focaliserons par la suite sur les échantillons dopés et contactés nous permettant d'appliquer un champ électrique transverse au plan des BQ pour le contrôle déterministe de leur état de charge (voir chapitre 4).

La croissance des échantillons a été réalisée au Centre de Nanosciences et de Nanotechnologies (C2N) à Marcoussis par Aristide Lemaître et Carmen Gomez. Les divers processus de nanofabrication (gravure, lithographie, contacts...) sont dus à Anthony Martinez, Stéphane Guillet, Kamel Merghem et Christian Ulysse.

### 2.2.3.1 Échantillon non dopé

L'échantillon non dopé intentionnellement, que nous nommerons S1 dans la suite, est constitué d'un plan de BQ InAs inséré entre deux couches de GaAs. Cet ensemble d'environ  $0.3 \mu\text{m}$  d'épaisseur est lui-même inséré dans une cavité à miroirs de Bragg composé de 24 paires<sup>1</sup> sous le plan de BQ et de 12 paires au dessus, comme le montrent les images MEB de la Figure 2.4. La densité de BQ est de l'ordre de quelques boîtes par  $\mu\text{m}^2$  mais nous pouvons remarquer que la distribution spatiale n'est pas homogène, ce qui a pour conséquence que certaines zones de l'échantillon ne possèdent presque aucune BQ, alors que d'autres présentent une densité trop importante pour envisager sereinement l'étude d'objets individuels. La distribution en énergie des boîtes est comprise entre 1.32 eV (940 nm) et 1.36 eV (910 nm) et nous observons la luminescence de la couche de mouillage autour de 1.43 eV (870 nm). Nous présentons Figure 2.4 (c) un spectre typique de luminescence sous excitation non-résonante.

1. Une paire de miroirs de Bragg est constituée de 535 Å de  $\text{Al}_{0.95}\text{GaAs}$  et 640 Å de GaAs ( $\lambda/4n$ ).

Les effets de la cavité à miroirs de Bragg sont multiples. Outre le fait d’orienter l’émission de la luminescence dans la direction de collection, elle a pour autre conséquence de filtrer spectralement la luminescence des BQ selon la valeur de son facteur de qualité  $Q = \lambda/\Delta\lambda$  où  $\lambda$  et  $\Delta\lambda$  sont la longueur d’onde centrale et la largeur de la bande passante de la cavité. Pour l’échantillon S1, le choix a été fait de faire croître la cavité avec un gradient d’épaisseur, de manière à pouvoir accorder la longueur d’onde centrale de la cavité à celle d’émission des boîtes. C’est ce que nous constatons sur la Figure 2.5 où nous présentons les spectres de photoluminescence de deux BQ étudiées à deux endroits distincts de S1. Ces mesures nous permettent aussi d’obtenir une valeur approximative du facteur de qualité de la cavité en ajustant le fond des spectres par une gaussienne (trait rouge) : nous obtenons des facteurs de qualité de quelques centaines. Nous verrons dans le chapitre 3 que même si ces facteurs de qualité sont faibles et empêchent d’obtenir une indiscernabilité proche de l’unité pour les photons émis, cela permet de collecter aussi bien l’émission de la raie zéro phonon de la BQ que celle assistée par émission-absorption de phonons. Cela nous permettra d’étudier l’interaction électron-phonon qui opère dans ce système. Il est aussi utile de mentionner ici que les facteurs de qualité des cavités utilisées sont trop faibles pour que nous puissions mettre en évidence une réduction du temps de recombinaison radiative des paires électrons-trous présentes dans la boîte. Nous ne tiendrons donc pas compte de l’effet Purcell dans la suite de ce manuscrit.

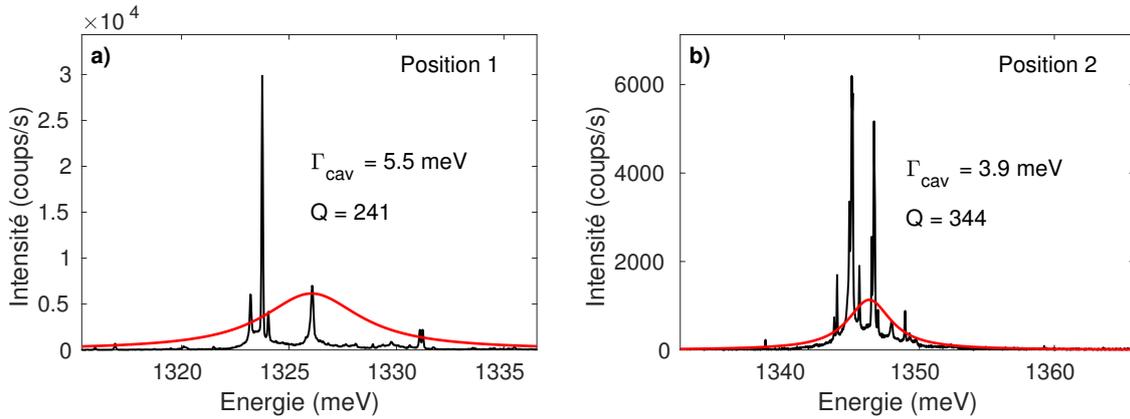


FIGURE 2.5 – Spectres sous excitation non-résonante de deux parties différentes de l’échantillon S1 (trait noir). Un fit Gaussien (trait rouge) du “fond” de luminescence permet d’obtenir un ordre de grandeur de la bande passante de la cavité et donc du facteur de qualité.

Finalement, les rubans micrométriques sont gravés périodiquement sur l’échantillon. La technique utilisée est une gravure physique ICP (pour *Inductively Coupled Plasma*) réalisée après la croissance de l’échantillon : un masque formant des séries de rubans de largeurs variables est appliqué sur l’échantillon (Figure 2.4 a). Lors du processus de gravure, les parties sous ce masque sont laissées intactes alors que le reste de l’échantillon est gravé. Des simulations sous le logiciel MEEP ont montré que pour des rubans de largeur inférieure à  $L = 0.8 \mu\text{m}$  les guides sont monomodes et deviennent multimodes pour des valeurs supérieures de  $L$ . Bien qu’en théorie il soit davantage intéressant d’utiliser des guides monomodes (puisque nous pouvons y décrire simplement la propagation d’un faisceau lumineux), nous utilisons des guides de largeur  $L \geq 1 \mu\text{m}$  afin de coupler convenablement le laser à l’intérieur et ainsi éviter d’accroître fortement la quantité de laser diffusé.

### 2.2.3.2 Échantillon dopé

#### Structure

Pour l'échantillon possédant des contacts électriques, que nous nommerons S2 dans la suite, la structure est essentiellement la même que celle de l'échantillon non dopé : un plan de BQ InAs/GaAs inséré entre deux couches de GaAs d'épaisseur  $d_1$  au dessous du plan de boîtes (côté substrat) et  $d_3$  au dessus du plan de boîtes (côté air). Cette structure est elle-même insérée dans une cavité à miroirs de Bragg composée de 24 paires sous le plan de BQ et de 12 paires au dessus. La densité de boîtes est similaire à celle de l'échantillon S1 (quelques boîtes par  $\mu\text{m}^2$ ) ainsi que leur longueur d'onde d'émission.

La première différence vient du dopage des différentes parties de la structure qui définissent les points d'application des tensions électriques. Ces dopages sont réalisés en incorporant des atomes dit *donneurs* (dopage  $n$ ) ou *accepteurs* (dopage  $p$ ) qui permettent non seulement de conduire le courant dans les parties dopées de l'échantillon mais aussi de créer un champ électrique interne entre les deux parties dopées : c'est le principe de la jonction PIN utilisée dans nos échantillons dont la structure de bande est donnée Figure 2.6. Dans notre cas, le dopage  $n$  est réalisé en incorporant des atomes de Silicium à la place des atomes de Gallium. En effet, le Silicium possédant un électron de valence de plus que le Gallium, il reste un électron disponible et mobile pour chaque atome de Silicium incorporé une fois que celui-ci a rétabli l'ensemble des liaisons covalentes de l'atome de Gallium remplacé. De manière similaire, le dopage  $p$  est réalisé en incorporant des atomes de Béryllium à la place d'atomes de Gallium, le Béryllium possédant un électron de valence de moins que le Gallium. Dans nos échantillons, la partie dopée  $n$  se trouve du côté du substrat à la distance  $d_1$  du plan de boîtes. La partie dopée  $p$  se trouve à une distance  $d_2$  du plan de boîtes. Ces dopages permettent de placer le niveau de Fermi au niveau de la bande de conduction de la partie dopée  $n$

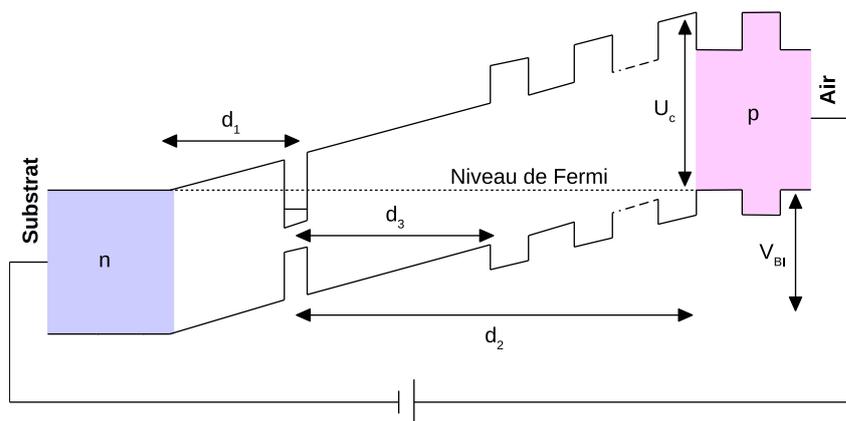


FIGURE 2.6 – Structure de bande de l'échantillon S2 sans tension externe appliquée. La zone bleue représente la partie dopée  $n$  avec un surplus d'électrons et la zone rose celle dopée  $p$ . Les distances  $d_1$  et  $d_2$  sont les distances entre le plan de BQ et les contacts  $n$  et  $p$  respectivement. Une conséquence des différents dopages est l'apparition d'une tension interne (built in en anglais)  $V_{BI}$  telle que  $qV_{BI} = E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}}$  où  $q = 1.60 \times 10^{-19}$  C est la charge d'un électron.

et au niveau de la bande de valence de la partie dopée  $p$  et de créer ainsi une tension  $V_{BI} = E_{gap}^{GaAs}/q$  (pour *built-in voltage*) comme représenté Figure 2.6.

La deuxième différence avec les échantillons non dopés est évidemment la création de contacts électriques (voir Figure 2.7 (a)) que nous pouvons relier (via des micro-soudures) à un générateur de tension permettant d'appliquer un champ électrique extérieur en plus du champ intrinsèque dû au dopage. Pour les contacts côté air, nous commençons par déposer une résine sur l'ensemble de l'échantillon où les rubans ont au préalable été gravés. La résine est retirée chimiquement des zones où nous souhaitons déposer les contacts puis une couche d'or de 100 nm d'épaisseur est évaporée. Finalement la résine est retirée du reste de l'échantillon et nous obtenons des bandes d'or de 100  $\mu\text{m}$  de largeur déposées perpendiculairement aux guides ce qui permet de leur fixer un potentiel commun. Pour le contact arrière en dessous du plan de boîtes, le problème est plus compliqué puisqu'il est nécessaire d'isoler électriquement la structure, afin de se prémunir des variations de potentiel du cryostat, tout en conservant un bon contact thermique pour refroidir convenablement l'échantillon. La solution pour laquelle nous avons opté, consiste à coller l'échantillon sur une plaque de Silicium sur laquelle nous avons, au préalable, fait croître d'un côté une couche de Titane puis une couche d'or d'environ 100 nm d'épaisseur chacune, et de l'autre côté une couche d'oxyde d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) d'environ 100 nm aussi. Par la suite, l'échantillon est collé sur la plaque de Silicium côté or ce qui permet de prendre le contact électrique sur l'or tout en étant isolé électriquement du cryostat grâce à la plaque de Silicium comme le montre la Figure 2.6 (b). Nous noterons que la couche d'oxyde d'Aluminium n'est ici qu'une "sécurité" puisque le silicium est

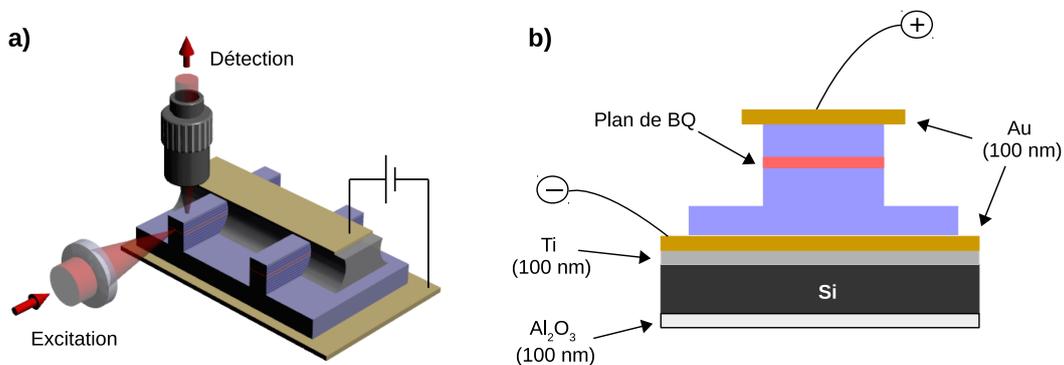


FIGURE 2.7 – (a) Schéma de l'échantillon avec contacts électriques à trois dimensions. Le plan de BQ (plan rouge) est inséré dans une cavité à miroirs de Bragg (bleue) afin d'améliorer la collection de la luminescence émise. Des guides sont gravés afin de permettre l'excitation résonante dans une direction orthogonale à la direction de collection de la luminescence. Des rubans d'or sont déposés sur le dessus des guides afin de pouvoir fixer leur potentiel côté air. Enfin, le contact arrière est réalisé en collant l'échantillon sur une plaque où nous avons déposé au préalable une couche d'or de 100 nm. (b) Vue de profil de l'échantillon contacté. La plaque de silicium sur laquelle est collé l'échantillon sert à isoler électriquement mais pas thermiquement du cryostat. La couche de titane permet simplement l'accroche de l'or et celle d'oxyde d'aluminium est une sécurité pour l'isolation électrique.

un isolant électrique. De plus, la couche de Titane mentionnée précédemment ne sert en réalité qu'à permettre l'accroche de l'or qui ne peut se fixer directement sur le Silicium. En reliant les rubans d'or au dessus des guides à la borne *plus* d'un générateur de tension et la plaque d'or sous l'échantillon à la borne *moins*, nous sommes donc capables d'appliquer une différence de potentiel dans la direction de croissance des BQ, et donc un champ électrique. Nous utilisons la diode en configuration *inverse*, une tension positive aplatissant les bandes et une tension négative accentuant leur courbure.

### Tension réellement appliquée sur l'échantillon

En théorie, la différence de potentiel appliquée aux points situés aux distances  $d_1$  et  $d_2$  du plan de BQ que nous noterons  $U$  et celle délivrée par le générateur de tension notée  $V$ , sont les mêmes. En réalité,  $U$  est plus petite que la valeur attendue, en raison des contacts ohmiques non idéaux au niveau des micro-soudures. Dans le but de connaître la tension réellement appliquée sur les BQ, nous utilisons deux valeurs particulières de la tension qui nous permettent de remettre à l'échelle la tension appliquée. La première valeur correspond à la tension nulle : si nous n'appliquons pas de différence de potentiel, la tension réellement appliquée est bien nulle. La deuxième correspond à la tension à partir de laquelle le courant passe dans l'échantillon, notée  $U_c$  Figure 2.6, c'est-à-dire lorsque le haut de la bande conduction passe sous le niveau de Fermi. En utilisant le fait qu'à l'interface entre deux semiconducteurs, la différence de gap se répercute pour deux tiers dans la bande conduction et pour un tiers dans la bande de valence nous avons

$$\begin{aligned} qU_c &= qV_{BI} + \frac{2}{3} \left( E_{\text{gap}}^{\text{AlAs}} - E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}} \right) \\ &= \left[ E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}} + \frac{2}{3} \left( E_{\text{gap}}^{\text{AlAs}} - E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}} \right) \right]. \end{aligned} \quad (2.2.1)$$

A 4 K, nous avons  $E_{\text{gap}}^{\text{GaAs}} = 1.52 \text{ eV}$  et  $E_{\text{gap}}^{\text{AlAs}} = 2.23 \text{ eV}$  ce qui donne  $U_c = 1.99 \text{ V}$ . Cela nous permet d'appliquer une homothétie sur  $V$ , la tension délivrée par le générateur, pour connaître la tension  $U$  réellement appliquée au niveau du plan des BQ. En notant  $V_c$  la tension délivrée par le générateur de tension à partir de laquelle le courant passe (Figure 2.8 (a)), nous obtenons  $U = (VU_c)/V_c$  tracée Figure 2.8 (b).

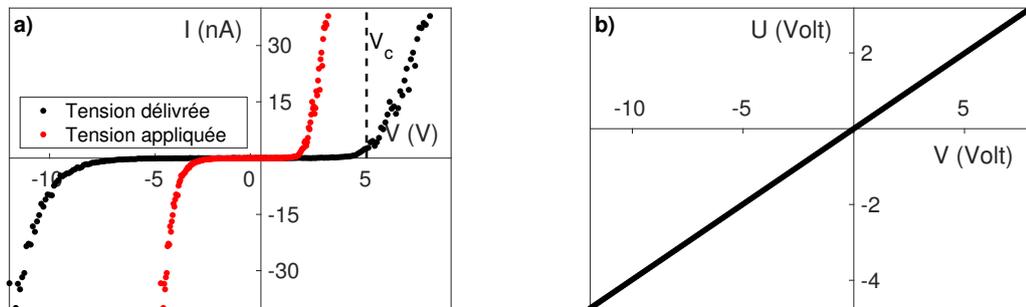


FIGURE 2.8 – (a) Procédure pour connaître la tension  $U$  réellement appliquée au niveau du plan de BQ. En noir l'intensité mesurée en fonction de la tension délivrée par le générateur et en rouge l'intensité mesurée en fonction de la tension réellement appliquée sur le plan de boîtes. (b) Calibration de la tension  $U$  appliquée sur le plan de BQ.

Notons qu'il est essentiel de remettre à l'échelle les tensions si nous souhaitons comparer des expériences faites à des jours différents, surtout si le cryostat a été arrêté entre temps et l'échantillon réchauffé. Nous avons en effet constaté des variations de la caractéristique de la jonction PIN entre deux remises en route du cryostat, que nous attribuons à la détérioration progressive des contacts ohmiques des micro-soudures. Dans le chapitre 4, nous présenterons et discuterons uniquement des résultats où la tension a été remise à l'échelle en suivant la procédure décrite précédemment.

### Position des niveaux électroniques sous champ électrique

Pour connaître la position d'un niveau électronique d'une BQ par rapport au niveau de Fermi en fonction de la tension appliquée, nous utilisons la technique dite du "bras de levier" schématisée Figure 2.9. Nous rappelons que le niveau de Fermi (noté  $E_F$ ) se trouve au bas du niveau de la bande de conduction de la partie de l'échantillon dopé  $n$  et que nous notons  $d_1$  et  $d_2$  les distances entre le plan de BQ et la partie dopée  $n$  d'une part, entre le plan de BQ et la partie dopée  $p$  d'autre part.  $\varepsilon$  est l'écart en énergie entre le niveau électronique de la BQ étudiée et le haut de la bande de conduction de GaAs et  $E$  sa position absolue en énergie. En définissant  $\alpha = d_1/(d_1 + d_2)$  ( $\alpha \in [0, 1]$ ) le paramètre caractérisant le bras de levier de notre structure, nous avons

$$E = E_F + \alpha q(V_{BI} - U) - \varepsilon. \quad (2.2.2)$$

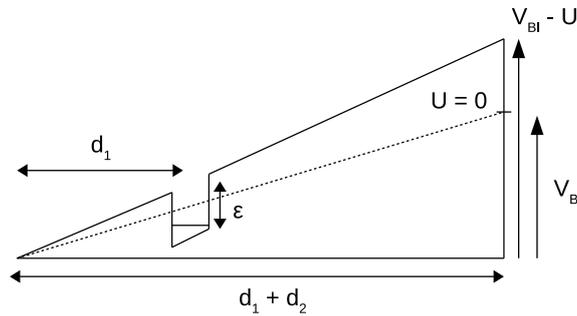


FIGURE 2.9 – Méthode du bras de levier permettant d'évaluer la position en énergie d'un niveau de la BQ par rapport au niveau de Fermi, en fonction de la différence de potentiel appliquée sur l'échantillon.

Cette méthode n'est évidemment valable que si le champ électrique appliqué au niveau du plan de BQ varie linéairement avec la tension appliquée. Nous verrons dans le chapitre 4 que si cette condition est en effet bien vérifiée pour les faibles tensions appliquées, elle reste incertaine pour des tensions plus importantes.

### 2.2.4 Montage expérimental pour l'excitation résonante de boîtes quantiques

La Figure 2.10 représente le montage expérimental utilisé qui nous permet de réaliser les expériences de micro-photoluminescence résonantes et standards en utilisant, dans le deuxième cas, le même objectif de microscope pour l'excitation et la détection. Ce montage est composé de trois parties que nous nous proposons de décrire dans la suite : la source laser, le cryostat et le système de microscopie confocale.

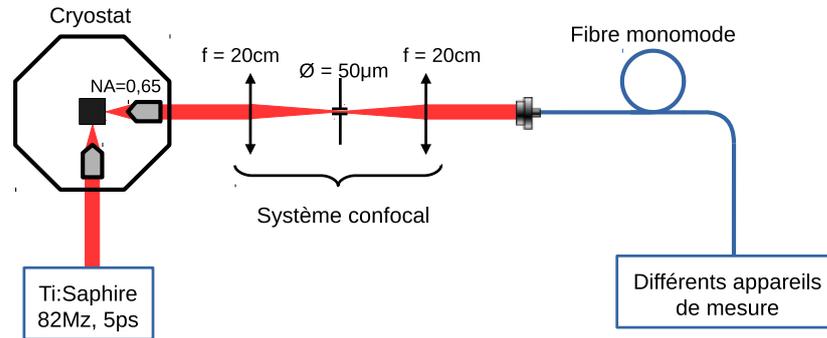


FIGURE 2.10 – Schéma du montage expérimental de micro-photoluminescence en géométrie confocale.

#### 2.2.4.1 Source laser et excitation des BQ

L'excitation des BQ se fait en utilisant un laser Titane : Saphir (Mira, Coherent) accordable entre 700 nm et 1000 nm pompé par un Verdi G 18 W. Le laser peut être utilisé selon deux modes de fonctionnement : un mode pseudo-continu et un mode impulsionnel à verrouillage de mode (mode-locking) délivrant des impulsions de quelques picosecondes à 82 MHz, soit une impulsion toutes les 12.2 ns. En général, les impulsions picosecondes sont modélisées par des fonctions sécantes hyperboliques. Nous constatons sur la Figure 2.11 (a) qui présente des mesures interférométriques d'autocorrélation (dont le principe sera détaillé dans la partie 2.3.5) pour le laser en mode impulsionnel que la forme du pulse n'est pas tout à fait celle attendue. Les pointillés rouges représentent un ajustement en sécante hyperbolique de la partie centrale du contraste qui donne un temps caractéristique pour l'impulsion de 5 ps, en accord avec les spécifications du laser.

Dans la suite de ce manuscrit, l'excitation non-résonante a systématiquement été réalisée en régime *continu* (sauf dans le cas de mesures de photoluminescence résolue en temps) et l'excitation résonante en régime pulsé comme décrit ci-dessus.

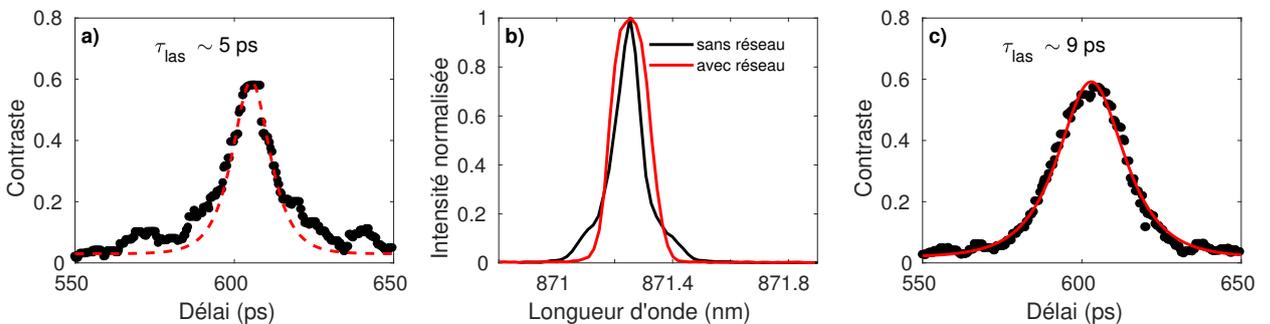


FIGURE 2.11 – Contraste d'interférence pour le laser en mode pulsé sans passer par le montage d'étirement des pulses (a) et en mode pulsé en passant par le montage d'étirement des pulses (c). (b) Profil spectral du laser en mode pulsé sans passer par le montage d'étirement des pulses (noir) et en passant par le montage d'étirement des pulses (rouge).

### Impulsions laser

Durant ma thèse, nous avons envisagé de travailler sur le contrôle de la durée et de la forme des impulsions laser. En effet, comme mis en évidence par différents groupes [88, 89], une excitation résonante est d'autant plus efficace que le recouvrement du mode laser et de la raie spectrale est grand, ce qui permettrait d'augmenter le couplage et donc la proportion de luminescence provenant de la boîte par rapport au laser diffusé.

Actuellement, les impulsions utilisées ont une largeur spectrale de plusieurs centaines de  $\mu\text{eV}$ , bien plus larges que celle des raies d'émission des BQ de l'ordre de quelques  $\mu\text{eV}$ . Afin d'obtenir des impulsions plus fines spectralement, il est possible de sélectionner spectralement une partie du spectre des impulsions laser, ce qui a pour conséquence d'augmenter la durée de l'impulsion. Nous noterons ici, que cette procédure est différente de celle qui consiste à décaler temporellement les différentes longueurs d'onde au sein de l'impulsion (chirped pulse), ce qui a pour conséquence d'allonger sa durée sans pour autant réduire sa distribution spectrale. Le deuxième point mentionné précédemment consiste à améliorer la forme de l'impulsion, de telle sorte que le recouvrement laser-boîte soit meilleur. Cela aura aussi pour conséquence de différencier facilement la contribution de la boîte et celle du laser dans les spectres de micro-photoluminescence : un ajustement permettra une identification simple de sa contribution (voir partie 2.3.1).

Pour tenter d'apporter une solution à ces deux problèmes nous avons réalisé avec Florent Margailan, Ingénieur d'études au laboratoire, le montage présenté Figure 2.12. L'idée de ce montage est simple : le faisceau laser est diffracté par un réseau, puis une partie de ce faisceau diffracté est sélectionnée spatialement par une fibre optique ce qui permet de couper certaines composantes spectrales de l'impulsion. Il est important de remarquer que, pour que les différentes composantes spectrales ne soient pas mélangées spatialement au moment où une partie du faisceau est sélectionnée, il est indispensable que le faisceau laser soit bien parallèle avant le réseau. C'est la raison pour laquelle nous avons utilisé une lentille de distance focale  $f = 1\text{ m}$  avant le réseau, afin de corriger la légèrè

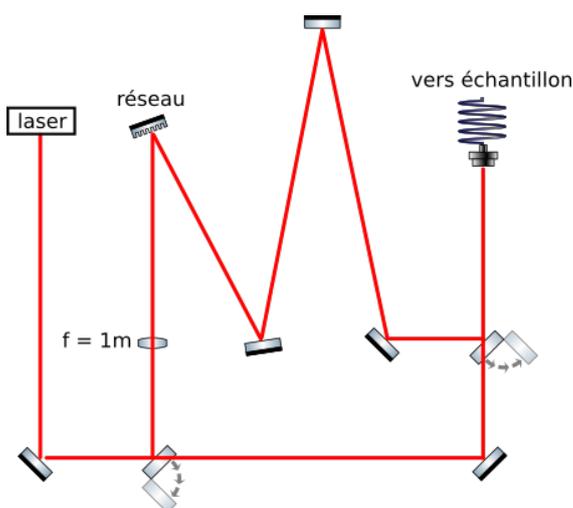


FIGURE 2.12 – Montage expérimental pour la création d'impulsions laser plus fines spectralement. Les impulsions sont envoyées sur un réseau de diffraction qui disperse la lumière, puis une partie du spectre est spatialement sélectionnée par le cœur d'une fibre optique.

divergence du faisceau laser. Le réseau utilisé possède 1800 traits/mm et la distance entre celui-ci et la fibre optique qui fait office de fente pour la sélection spatiale est  $D \sim 6$  m. La Figure 2.11 (b) présente le spectre du laser dans le cas où il passe (en rouge) et ne passe pas (en noir) par le réseau de diffraction. Nous constatons que ce montage permet effectivement de couper les "ailes" du laser tout en élargissant légèrement la raie. La Figure 2.11 (c) montre que l'impulsion atteint une largeur de 10 ps soit une durée deux fois plus longue qu'initialement, ce qui est en accord avec les mesures spectrales.

En conclusion, ce montage nous a permis d'obtenir des impulsions laser plus fines et mieux définies spectralement. Cependant, un changement de longueur d'onde du laser entraîne un désalignement du montage, puisque le faisceau diffracté se déplace alors spatialement et ne se couple plus dans la fibre optique. Pour la suite, plusieurs solutions peuvent être envisagées. i) Soit conserver le montage précédent et étirer l'impulsion à la longueur d'onde fixée par la transition de la BQ d'intérêt ; ii) soit construire un montage où le faisceau laser passe deux fois par le réseau de diffraction avec une sélection spatiale des longueurs d'onde entre ces deux passages (grâce à une fente par exemple). Le deuxième passage sur le réseau permet à la fois de ne pas désaligner le montage lorsque la longueur d'onde du laser change, mais aussi de refocaliser le faisceau et ainsi permettre un meilleur couplage dans la fibre optique.

Malgré l'intérêt potentiel de travailler avec des impulsions laser plus longues, nous n'avons pas exploité cette piste et toutes les expériences présentées dans la suite de ce manuscrit ont été réalisées avec des impulsions non filtrées spectralement.

### Couplage du laser dans les guides gravés

Un autre point crucial de notre expérience est le couplage du laser dans les guides gravés. Il doit être le meilleur possible, non seulement afin d'exciter convenablement les BQ situées dans le guide, mais aussi pour que le laser diffusé soit le plus faible possible. Si le couplage est mauvais, un fond s'ajoute à la luminescence de la boîte et détruit par exemple, la statistique d'émission de photons uniques des BQ (voir Section 2.3.3). C'est la raison pour laquelle nous choisissons des guides de taille micrométrique, proche de la limite de diffraction des objectifs.

Dans la première partie de ma thèse, pour focaliser le faisceau laser sur les guides nous avons utilisé un objectif de microscope standard de grossissement  $\times 10$ , de focale effective  $f = 17.19$  mm, d'ouverture numérique N.A. = 0.25 et de distance de travail  $d = 6.4$  mm. Ce montage nous a permis de réaliser les mesures d'indiscernabilité présentées dans le chapitre 3 mais la proportion de laser diffusé restait grande.

Par la suite, nous avons utilisé une lentille asphérique KPA12 (Newport) de focale  $f = 15$  mm, d'un diamètre de 15 mm et de distance de travail  $d = 11.54$  mm qui nous a permis de diminuer la quantité de laser diffusé grâce à une tache plus uniforme. Un autre avantage de la lentille asphérique est d'être beaucoup moins lourde que l'objectif de microscope, ce qui permet d'éviter les problèmes de grippage des piézo-électriques sur lesquels sont montés les optiques à l'intérieur du cryostat.

### 2.2.4.2 Cryostat

L'échantillon ainsi que les objectifs de détection et d'excitation sont placés dans un cryostat à hélium gaz fonctionnant en circuit fermé, développé au sein du laboratoire et réalisé par la société My Cryo Firm. Le cryostat est pompé de manière à obtenir un vide de  $10^{-9}$  bar. L'échantillon est collé avec de la laque d'argent sur un porte échantillon relié par un contact thermique souple (cuivre tressé) à un tube pulsé qui achemine de l'Hélium et permet de travailler à une température de 4 K. Une résistance à proximité de l'échantillon permet de faire varier la température entre 4 K et 100 K grâce à un asservissement PID, cette température étant mesurée par une diode Cernox. L'accès à l'échantillon se fait actuellement par deux faces (une pour l'excitation et une pour la détection) mais un troisième accès est envisageable pour faire des mesures en transmission. Enfin, les vibrations du cryostat ont été calibrées par des mesures interférométriques qui ont mis en évidence des vibrations à une fréquence de 1.4 Hz (fréquence du tube pulsé qui injecte l'Hélium) et avec une amplitude de 70 nm. Cette valeur particulièrement faible de l'amplitude des vibrations permet de rester plusieurs jours sur une même BQ sans toucher aux piézo-électriques sur lesquels sont fixés l'objectif de microscope ou la lentille asphérique pour l'excitation et l'objectif de microscope pour la détection. En effet, comme nous le verrons dans la suite, l'objectif de détection collecte la luminescence sur une surface d'environ  $1 \mu\text{m}^2$  bien plus grande que l'amplitude des vibrations et la taille des BQ, de telle sorte que ces vibrations n'ont pas d'influence sur les mesures. Grâce à cette grande stabilité nous avons pu réaliser les mesures d'indiscernabilité présentées dans le chapitre 3, les acquisitions pouvant durer jusqu'à 15 heures parfois.

### 2.2.4.3 Microscopie confocale

La luminescence est collectée au moyen d'un objectif de microscope standard de grossissement  $\times 40$ , de focale effective  $f = 4.03$  mm, d'ouverture numérique N.A. = 0.65 et de distance de travail

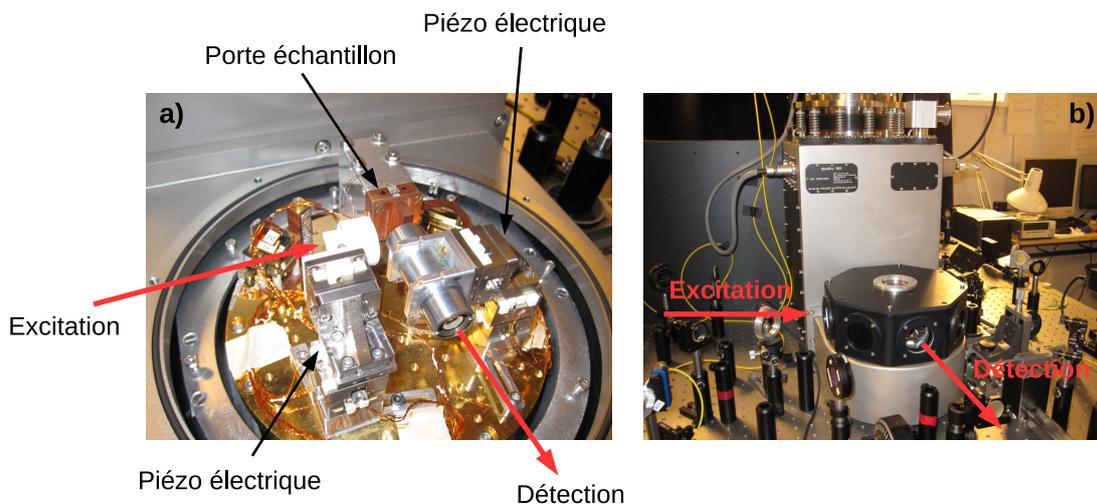


FIGURE 2.13 – (a) Montage expérimental intérieur au cryostat pour l'étude résonante de BQ. (b) Vue de la table optique, cryostat fermé.

$d = 0.65$  mm. Afin d'être en mesure de réaliser l'étude de BQ individuelles nous utilisons un montage de détection confocal comme celui représenté Figure 2.10 qui consiste à faire, grâce à une lentille de focale  $f = 20$  mm, l'image de la surface de l'échantillon sur un trou de filtrage de  $50 \mu\text{m}$  de diamètre. Par la suite, le faisceau est refocalisé par une deuxième lentille de focale  $f = 20$  mm, puis couplé dans une fibre optique monomode qui permet d'envoyer la luminescence collectée vers différents dispositifs d'analyse, détaillés dans la partie suivante.

Au vu des choix faits, le dispositif décrit ci-dessus nous permet d'observer une zone de l'ordre du micromètre carré sur l'échantillon et donc, compte-tenu de la densité de boîtes, d'observer la luminescence de BQ uniques ou, de quelques boîtes. Un autre intérêt de ce montage est de filtrer spatialement une partie du laser diffusé et ainsi améliorer considérablement le rapport intensité de la BQ sur intensité du laser.

### 2.2.5 Utilisation d'un laser non résonnant pour retrouver l'émission résonante

Pour finir cette partie sur l'excitation résonante, il est utile de préciser que, parfois, un laser non-résonnant de faible puissance est nécessaire pour observer la luminescence résonante [90, 91, 45, 92]. En effet, nous avons observé lors de nos nombreuses études que seule une très faible fraction de BQ émet de la luminescence sous excitation résonante. Cet effet a été interprété par Nguyen *et al* [90, 91] comme résultant de la présence de défauts dans la couche de mouillage proches de la BQ, jouant le rôle de pièges électrostatiques pour les porteurs qui existent en raison du dopage résiduel. Nous verrons dans la partie 3.2.2 que lorsque ces défauts sont suffisamment loin de la boîte (au delà de la dizaine de nanomètres), leur présence entraîne un élargissement de la raie de luminescence. Dans le cas où les défauts sont proches de la boîte, les charges piégées peuvent passer par effet tunnel dans la boîte et empêcher l'observation de la luminescence par blocage de Coulomb. L'utilisation d'un laser non résonnant, dans notre cas un laser Hélium-Néon (He-Ne) stabilisé en fréquence, permet d'injecter des porteurs (soit des électrons soit des trous) dans la BQ et ainsi de permettre aux charges responsables du blocage de Coulomb de se recombiner. Ainsi, dans le cas d'une excitation résonante (continue ou pulsée), la paire électron-trou est photo-créeée très rapidement dans la boîte par rapport au temps caractéristique de passage par effet tunnel d'une charge d'un défaut proche de la BQ vers la BQ, qui est de l'ordre de la milliseconde [91].

Nous avons également observé que le laser He-Ne supplémentaire permet, dans certains cas, d'augmenter le signal de luminescence résonante et peut modifier la forme des oscillations de Rabi. Il s'agit probablement aussi d'un effet dû à la présence de charges environnantes puisque nos échantillons possèdent des miroirs de Bragg d'AlGaAs/GaAs, et que l'aluminium est un élément connu pour créer des porteurs libres dans le matériau.

Enfin, nous verrons dans le chapitre 4, que l'application d'un champ électrique transverse au plan des BQ, permet de contrôler de manière déterministe l'état de charge de la boîte, et d'observer de manière systématique et très efficace la luminescence sous excitation résonante.

## 2.3 Caractérisation de l'émission d'une boîte quantique

### 2.3.1 Spectres de photoluminescence et oscillation de Rabi

La première étape lors de l'étude de BQ est la caractérisation du spectre de luminescence. Pour ce faire, la luminescence de la boîte est couplée dans la fibre monomode (voir partie 2.2.4) et envoyée sur un spectromètre Shamrock (Andor) de focale 500 mm muni d'un réseau de 1200 traits/mm et d'une caméra CCD Idus 416 (Andor), dont la barrette comporte  $2000 \times 256$  pixels, de  $15 \mu\text{m}$  de côté. La limite de résolution spectrale est d'environ  $60 \mu\text{eV}$ , ce qui correspond à une résolution de  $0.05 \text{ nm}$  à la longueur d'onde d'émission des BQ étudiées ( $920 \text{ nm}$ ).

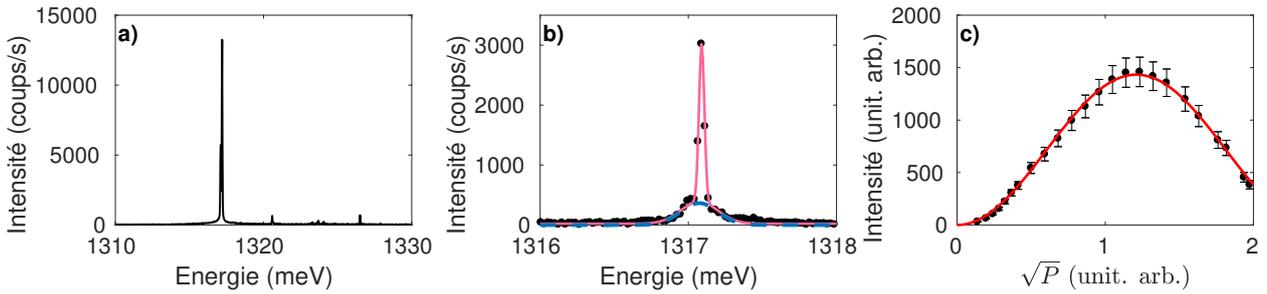


FIGURE 2.14 – Spectres de micro-photoluminescence d'une BQ sous excitation non-résonante (a) et résonante (b). (c) Oscillation de Rabi : l'état du système à deux niveaux après passage de l'impulsion laser est entièrement déterminé par la puissance du laser d'excitation. La courbe rouge est un ajustement des données en sinus carré de la racine de la puissance laser, comme vu dans la partie 1.3.2.3.

Le spectromètre possède aussi une deuxième sortie, munie d'une fente qui permet de sélectionner une certaine gamme spectrale en fonction de la taille de la fente. Cette sortie est utile lorsque nous souhaitons réaliser des expériences sous excitation non-résonante, où il est nécessaire de sélectionner une seule raie d'émission (voir par exemple les mesures de temps de cohérence présentées dans la partie 2.3.5). La luminescence est ensuite couplée dans une fibre et peut être envoyée vers les différents dispositifs d'analyse.

Les Figures 2.14 (a) et (b) présentent pour une boîte issue d'un échantillon de type S1, les spectres d'émission sous excitation non-résonante et résonante. La présence de plusieurs raies pour l'excitation non-résonante peut être due à la recombinaison radiative d'autres états de charge de la même BQ, ou à la présence d'autres boîtes dans la zone étudiée de l'échantillon malgré l'utilisation du système de microscopie confocale. Au contraire, sous excitation résonante, le spectre de luminescence ne présente qu'une seule raie dont l'intensité est ajustée par la somme de deux gaussiennes (courbe rose), une pour la boîte dont nous ne résolvons pas la raie et une pour le laser diffusé, collecté par notre système de détection (pointillés bleus). La Figure 2.3 (c) présente l'évolution de la luminescence d'une BQ sous excitation résonante en fonction de la puissance du laser. Nous observons une oscillation de Rabi comme décrit dans la partie 1.3.2.3 : l'intensité de la luminescence oscille en sinus carré de la racine de la puissance du laser (courbe rouge). C'est la preuve expérimentale que nous contrôlons optiquement l'état du système à deux niveaux. Nous faisons remarquer ici que depuis que nous étudions des échantillons comportant une cavité à mi-

roirs de Bragg, nous n'avons jamais observé plus d'une oscillation de Rabi. Ce phénomène pourrait s'expliquer par une compétition entre l'émission de la luminescence dans la direction orthogonale au guide d'onde et l'émission dans le mode du guide.

### 2.3.2 Polarisation de l'émission d'une boîte quantique

L'étude de la polarisation des raies de luminescence nous renseigne sur la nature des états de la boîte couplés à la lumière. Nous avons vu par exemple dans la partie 1.2.4 que pour une paire électron-trou neutre, l'anisotropie de la boîte conduit à la levée de dégénérescence des états de paires électron-trou  $|\pm 1\rangle$  en deux états polarisés linéairement  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . C'est ce que met en évidence la Figure 2.15 (a) qui présente les raies de luminescence d'une paire électron-trou neutre sous excitation non-résonnante pour une boîte provenant d'un échantillon de type S1. L'ajustement (en rouge) permet de mesurer un écart en énergie  $\Delta E = 75 \mu\text{eV}$  entre les états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$ . Cette valeur est typique des splittings de structure fine  $|X\rangle$ - $|Y\rangle$  référencés dans la littérature [61, 69, 70].

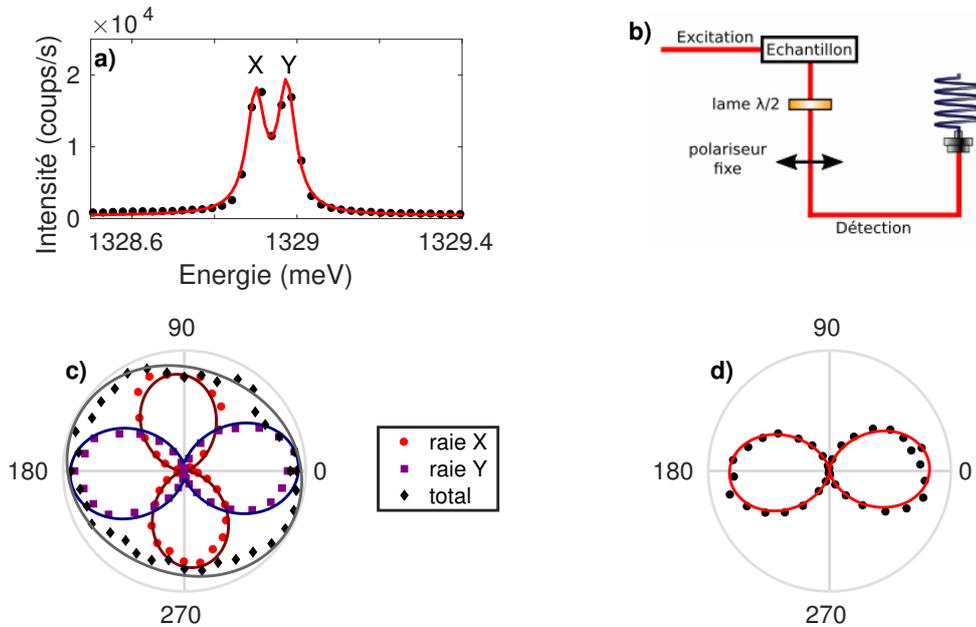


FIGURE 2.15 – (a) Structure fine des états brillants de la paire électron-trou neutre sous excitation non-résonnante. (b) Montage expérimental pour la caractérisation du diagramme de polarisation de la luminescence d'une BQ. (c) Diagramme de polarisation de l'exciton neutre dont la structure spectrale est donnée en (a). Nous constatons que les deux raies sont polarisées linéairement. (d) Diagramme de polarisation de la paire électron-trou neutre sous excitation résonnante : la luminescence est polarisée rectilignement.

Pour vérifier que ces deux raies correspondent bien à des polarisations différentes, nous utilisons le montage expérimental schématisé Figure 2.15 (b). Ce montage consiste à placer une lame demi-onde ( $\lambda/2$ ) suivie d'un polariseur sur le chemin de la luminescence collectée. Une rotation de  $180^\circ$  de la lame  $\lambda/2$  permet de faire tourner la polarisation de la luminescence de la BQ étudiée de  $360^\circ$ , cette luminescence étant par la suite analysée par un polariseur fixe. Nous pouvons alors reconstruire le diagramme de polarisation des raies étudiées comme mis en évidence Figure 2.15 (c). Les points

rouges et violets correspondent à l'intensité de la luminescence de chaque raie de la figure (a) en fonction du double de l'angle de rotation de la lame demie-onde et les points noirs à la luminescence totale des deux raies. Pour les raies X et Y, les données sont ajustées par une fonction cosinus carré. Nous constatons que les raies  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont polarisées rectilignement, ce qui prouve qu'il s'agit bien de l'exciton neutre. Remarquons que contrairement à ce que nous aurions pu attendre, les polarisations des deux raies ne sont pas orthogonales (nous mesurons un angle de  $95^\circ$ ), ce qui s'explique par le mélange des bandes de trous lourds et de trous légers [54]. Notons que pour des boîtes où le splitting X-Y est plus petit que la résolution du spectromètre ( $60 \mu\text{eV}$ ), nous ne différencions pas les deux raies et ne pouvons pas les ajuster indépendamment. Dans ce cas, il est tout de même possible de savoir s'il s'agit de l'exciton neutre, en remarquant que le maximum d'intensité "oscille" légèrement avec l'angle de la lame  $\lambda/2$  comme nous le verrons dans le chapitre 4.

La Figure 2.15 (d) présente le diagramme de polarisation de l'exciton neutre sous excitation résonante. Dans ce cas, l'état des photons émis est une combinaison linéaire cohérente des états  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  ce qui entraîne une polarisation linéaire la la luminescence [54].

Dans le cas d'excitons chargés ( $X^+$  ou  $X^-$ ), les travaux de Belhadj *et al* en 2010 [93] ainsi que ceux de Ohno *et al* en 2011 [94] ont mis en évidence que la polarisation de la luminescence n'est pas rectiligne. Ainsi, il est possible d'observer une polarisation circulaire de la luminescence, ou elliptique selon le mélange de bandes trous lourds - trous légers. Le diagramme de polarisation donne donc des informations très utiles pour identifier les raies de photoluminescence étudiées, comme nous le verrons dans la suite de ce manuscrit.

### 2.3.3 Statistique d'émission

Un intérêt majeur des BQ, ou plus généralement de tout système comportant des niveaux discrets (ou du moins avec une largeur faible devant l'énergie de la transition), comme par exemple les atomes, est d'être une source potentielle de photons uniques. En effet, comme nous l'avons vu dans la partie 1.3, plus un état propre du système a une énergie bien définie, plus le temps de vie de cet état excité sera grand. Dans ce cas, si nous considérons que le processus d'excitation ne crée qu'une paire électron-trou dans la boîte, une fois que cette paire s'est recombinaée en émettant un photon, alors pour que le deuxième photon soit émis, il est nécessaire de remplir deux conditions. i) Une nouvelle paire électron-trou doit être créée dans la boîte, ii) cette paire doit se recombinaer pour émettre un deuxième photon. Si la première condition peut être facilement réalisée en utilisant un laser continu par exemple, la deuxième est intrinsèque au système et assure que la statistique d'émission est sub-poissonienne, c'est-à-dire que les photons sont émis un par un, puisque la paire électron-trou existe pendant un temps caractéristique  $T_1$ .

Expérimentalement, la mise en évidence de cette statistique d'émission se fait en suivant un concept simple. Le principe de la mesure a été proposé pour la première fois par les astrophysiciens Hanbury-Brown et Twiss (HBT) dans les années 50 [95, 96]. La source de lumière dont nous souhaitons connaître la statistique d'émission, est envoyée sur une lame semi-réfléchissante avec à chaque sortie (en transmission et en réflexion) un détecteur de photons uniques comme représenté Figure 2.16 (a). Considérons dans un premier temps le cas où la source de lumière émet des photons uniques. Un photon est alors, quoi qu'il arrive au niveau de la lame semi-réfléchissante, mesuré par

un seul des détecteurs. En effet, même si sa nature quantique fait qu'il peut prendre à la fois les deux sorties de la lame semi-réfléchissante, le fait qu'il soit mesuré par la suite, le projette sur un unique état quantique : photon sur la voie 1 ou photon sur la voie 2. Ce photon est donc mesuré soit sur le détecteur 1, soit sur le détecteur 2 mais jamais sur les deux au même instant. Si nous nous plaçons maintenant dans le cas où deux photons arrivent sur la lame semi-réfléchissante, il est évidemment possible que l'un des deux soit réfléchi et l'autre transmis (50% des cas) et nous détectons un photon sur chaque détecteur au même instant. Nous en concluons alors que, pour un grand nombre de réalisations de cette expérience, si un photon n'est jamais détecté au même instant sur chaque détecteur, la lumière analysée est composée de photons arrivant un par un, c'est-à-dire de photons uniques.

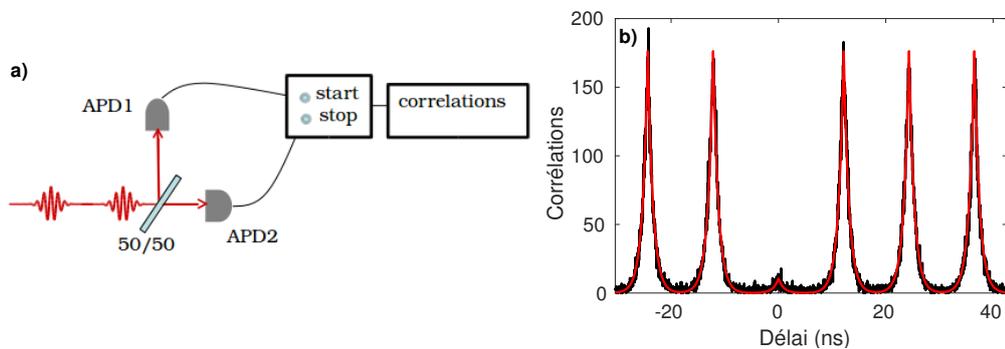


FIGURE 2.16 – (a) Schéma du montage expérimental de type Hanbury-Brown et Twiss (HBT) pour la mesure de la statistique d'émission de la luminescence d'une BQ. (b) Diagramme de coïncidences d'une BQ sous excitation résonante pour un temps d'acquisition de 15 minutes. Nous constatons que les corrélations à délai nul sont très faibles, ce qui met en évidence que la BQ étudiée est une bonne source de photons uniques. Un ajustement suivant l'équation (2.3.2) (trait rouge) permet d'obtenir une valeur de  $g = 0.05 \pm 0.01$ .

Dans notre cas, le montage présenté Figure 2.16 (a) a été réalisé en utilisant uniquement des fibres optiques, ce qui permet de s'affranchir des problèmes d'alignement. Les fibres utilisées sont monomodes et la lame séparatrice est en réalité un coupleur de fibre 50/50 (FBS pour fibered beam splitter). Les détecteurs de photons uniques sont des photodiodes à avalanche (APD) de type SPCM AQR-16, Perkin Elmer avec quelques centaines de coups noirs par seconde et un bruit électronique de l'ordre de 50 coups par seconde. Ces APD sont reliées à un corrélateur de photons Picoharp 300 qui permet une mesure du temps entre deux événements : détection d'un premier photon sur l'APD *start* et détection d'un deuxième sur l'APD *stop*. L'histogramme des corrélations peut alors être construit et une absence de corrélations à délai nul correspond au cas d'une source de photons uniques. Notons que notre montage expérimental permet aussi d'ajouter un délai électronique variable entre l'APD *stop* et le corrélateur. Nous présentons Figure 2.16 (b) un histogramme de coïncidences d'une boîte sous excitation résonante. Nous observons clairement une très faible proportion de coïncidences à délai nul ce qui met en évidence que la boîte étudiée est une source de photons uniques comme attendu. La statistique d'émission est caractérisée par le paramètre  $g$  défini comme le ratio de l'intensité intégrée du pic central  $A_0$  par l'intensité intégrée

moyenne des autres pics  $\langle A \rangle_{\neq 0}$  :

$$g = \frac{A_0}{\langle A \rangle_{n \neq 0}}. \quad (2.3.1)$$

Comme nous le justifierons dans le chapitre 3, les valeurs de  $A_0$  et de  $\langle A \rangle_{\neq 0}$  sont extraites de l'histogramme de coïncidences grâce à un ajustement en exponentielles décroissantes pour chaque pic (trait rouge Figure 2.16 (b)) de la forme

$$f(t) = A_0 e^{-\frac{|t|}{T_1}} + \langle A \rangle_{\neq 0} \sum_n e^{-\frac{|t-n\tau_{las}|}{T_1}}, \quad (2.3.2)$$

où  $T_1$  est le temps de vie de l'état excité,  $\tau_{las}$  le délai entre chaque pulse laser (ici 12 ns) et  $n$  un entier relatif. Nous obtenons pour l'histogramme présenté ici une valeur de  $g = 0.05 \pm 0.01$  correspondant à une bonne source de photons uniques, et attribuons les corrélations à délai nul à la présence de laser diffusé et collecté par l'objectif de détection [45]. Remarquons tout de même que Fischer *et al* ont mis en évidence récemment que plusieurs photons peuvent être émis par un seul pulse laser [75] dans le cas de pulses longs et d'un temps de vie radiatif court.

### 2.3.4 Mesure du temps de vie radiatif

Lorsqu'une paire électron-trou est créée dans une BQ (par excitation laser dans notre cas), celle-ci existe pendant un certain temps avant de se recombiner en émettant un photon. Le temps caractéristique correspondant est appelé temps de vie radiatif et est noté  $T_1$ . Dans le cas d'une excitation laser continue, la mesure du temps de vie radiatif ne peut être faite de manière directe et l'information voulue peut, par exemple, être tirée des mesures d'unicité des photons émis utilisant le montage décrit dans la partie précédente. En effet, l'histogramme des coïncidences en fonction du temps présente un creux (*dip* en anglais), et la largeur de ce creux est liée à la valeur de  $T_1$  (voir Figure 2.17 (a) tiré de [87]). Sous excitation pulsée, l'idée de la mesure est très intuitive et nous la présentons ci-dessous.

Sous excitation pulsée, la paire électron-trou est créée dans la boîte à un instant bien déterminé, correspondant au passage du pulse laser sur la boîte étudiée puisque la durée des impulsions laser (quelques picosecondes) est très petite devant le temps de vie radiatif (quelques centaines de picosecondes). Une photodiode ultra-rapide délivrant un signal électrique pour chaque impulsion laser est alors connectée à la voie *start* du corrélateur PicoHarp, alors que la luminescence de la boîte étudiée est envoyée vers une APD connectée à la voie *stop*. Nous construisons alors un histogramme de corrélations comme celui présenté Figure 2.17 (b) (en échelle semi-log.). Si la décroissance de la luminescence est due à une émission radiative, alors la courbe est une monoexponentielle décroissante et le temps caractéristique de décroissance donne le temps de vie (voir Eq. (1.3.61)). Dans le cas de la mesure sous excitation résonante présentée Figure 2.17 (b), nous mesurons  $T_1 = 708 \pm 5$  ps.

Sous excitation résonante, la fibre qui collecte la luminescence est directement branchée sur l'APD puisque seule la raie étudiée est présente. Sous excitation non-résonante, la luminescence passe par le spectromètre, puis la raie dont nous voulons mesurer le temps de vie est couplée dans une fibre branchée sur l'APD. La résolution temporelle de l'APD est de 300 ps, permettant la mesure de temps de vie de plusieurs centaines de picosecondes. En effet, la décroissance exponentielle se

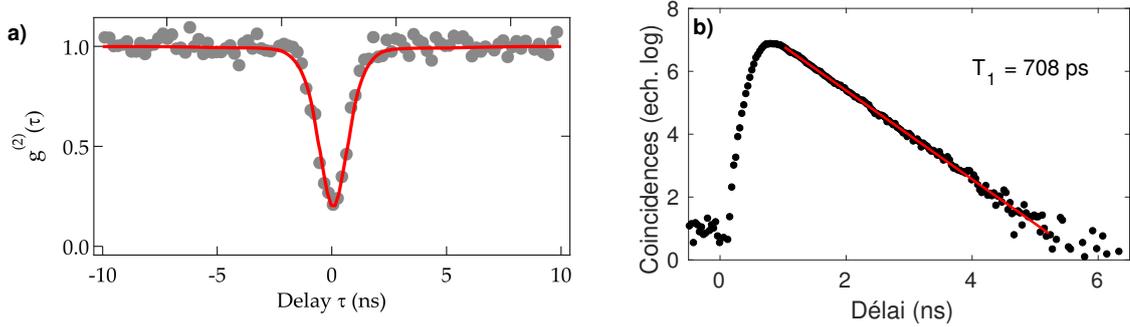


FIGURE 2.17 – (a) Histogramme de coïncidences en fonction du temps d'une boîte quantique sous excitation continue [87]. La largeur du creux à délai nul est contrôlée par la valeur du temps de vie de l'état excité. (b) Mesure du temps de recombinaison radiative d'une BQ sous excitation résonante. Il s'agit de l'histogramme des coïncidences (cercles noirs en échelle semi-log.) entre le signal de la photodiode ultra-rapide provenant du laser (voie start) et la luminescence de la BQ étudiée (voie stop). La courbe rouge est un fit linéaire dont la pente est égale à  $-1/T_1$ .

fait sur une dynamique de quelques nanosecondes, qui correspond à plusieurs fois le temps de vie comme nous pouvons le constater Figure 2.17 (b).

Finalement, notons que durant mon travail de thèse nous n'avons jamais mis en évidence la présence d'un temps long lors du processus de recombinaison radiative, temps long caractéristique de la contribution des états noirs (de moment cinétique  $J = \pm 2$ ) à la relaxation de la paire électron-trou [62, 63].

### 2.3.5 Mesure du temps de cohérence

Nous avons vu dans la partie 2.3.1 que la résolution du spectromètre utilisé pour l'analyse de la photoluminescence est de  $60 \mu\text{eV}$ , ce qui ne permet pas de résoudre la largeur des raies de luminescence des BQ ( $\sim 1 \mu\text{eV}$ ). Cependant, il est intéressant de pouvoir mesurer l'élargissement des raies, étant donné qu'il est étroitement lié aux processus de décohérence dus à l'interaction de la boîte avec son environnement. Pour ce faire, la première possibilité est de placer une cavité Fabry-Perot de bande passante inférieure au  $\mu\text{eV}$  et accordable en énergie devant le spectromètre, ce qui permettrait de mesurer "pas à pas" l'intensité émise en fonction de l'énergie. Cette méthode est couramment utilisée mais requiert un travail expérimental important puisque la cavité Fabry-Perot doit être stabilisée à la dizaine de nanomètres près, nécessitant l'utilisation d'un procédé d'asservissement. Nous avons choisi dans notre équipe d'utiliser un dispositif de spectroscopie à transformée de Fourier (STF) qui permet de mesurer le temps de cohérence de l'émission et ainsi remonter à la largeur et à la forme de la raie de luminescence étudiée (voir partie 1.3.3.6).

### Montage expérimental

Le montage expérimental utilisé pour la mesure du temps de cohérence est un interféromètre de Michelson standard comme schématisé Figure 2.18 (a). Le signal sortant de la fibre de collection est envoyé sur un cube séparateur dont les coefficients de réflexion et de transmission sont indépendants de la polarisation de la lumière incidente. Un des deux faisceaux est rétro-réfléchi par un miroir

fixe et l'autre par un miroir mobile, monté sur une platine de translation motorisée, possédant une course de 30 cm correspondant à un délai de 2 ns. Les deux faisceaux se recombinaient et interfèrent sur le cube, passent à travers un iris, puis une lentille convergente de focale 10 mm focalisant le faisceau sur une APD non fibrée (de type SPCM AQR-16, Perkin Elmer). L'iris est ici crucial et sert à sélectionner l'anneau central d'interférences afin d'obtenir le meilleur contraste possible : plus l'iris est fermé, plus le contraste est bon. En contrepartie, plus l'iris est fermé, plus le signal détecté est faible et un compromis doit être fait. À la différence des montages utilisant des APD fibrées (HBT, mesure de  $T_1$ ), le signal est ici envoyé sur l'APD en espace libre, ce qui impose de placer l'APD dans une boîte à l'abri de la lumière ambiante afin d'éviter un bruit de fond trop important. Par conséquent, une correction est faite après chaque mesure, en soustrayant au signal enregistré le bruit de fond causé par la lumière ambiante. Le moteur de la platine de translation fonctionne pas-à-pas et pour toutes les expériences présentées dans ce manuscrit, nous avons choisi des pas de 0.1 mm (correspondant à un intervalle de temps d'environ 0.7 ps) et un temps d'acquisition pour chaque position de 1 s.

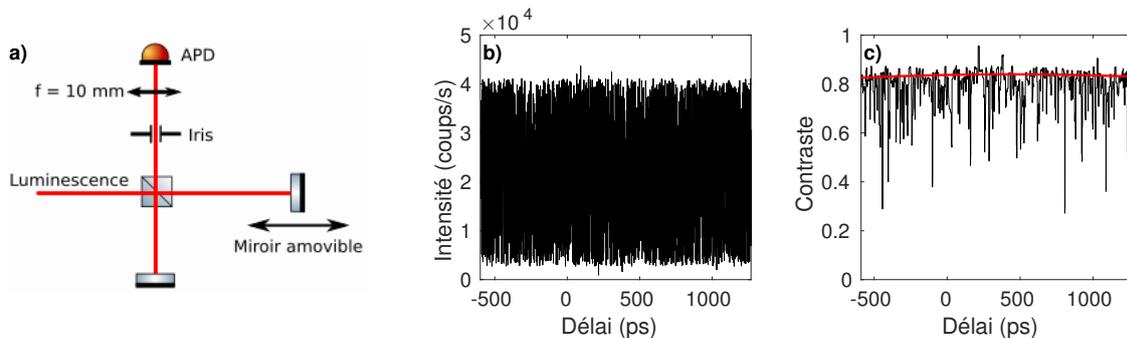


FIGURE 2.18 – (a) Schéma de l'interféromètre de Michelson utilisé pour les mesures de temps de cohérence. (b) Interférences d'un laser Hélium-Néon stabilisé en fonction du délai optique entre les deux voies de l'interféromètre. (c) Contraste des interférences du laser.

### Calibration du montage

Bien qu'étant un montage classique, un interféromètre de Michelson doit être aligné avec la plus grande attention : les deux faisceaux (correspondant aux deux voies de l'interféromètre) doivent se recouvrir parfaitement sur l'APD pour toutes les positions du miroir mobile. Dans la pratique, nous arrivons rarement à atteindre un alignement parfait et l'interféromètre doit être calibré avant de réaliser une mesure, de manière à corriger l'interférogramme obtenu par la perte de contraste expérimentale. Pour ce faire, nous utilisons un laser Hélium-Néon stabilisé en fréquence possédant une longueur de cohérence de 10 m (soit un temps de cohérence de 30 ns) bien supérieure à la longueur de l'interféromètre. En conséquence, nous devrions mesurer un contraste de 1 sur toute la longueur du déplacement du miroir. Toute déviation est alors due à des imperfections expérimentales que nous pouvons évaluer. La Figure 2.18 présente l'interférogramme mesuré (b) et le contraste correspondant (c) en fonction du délai entre les deux voies de l'interféromètre. Nous constatons que le contraste ne varie presque pas lorsque le miroir mobile se déplace, ce qui signifie que l'alignement réalisé est optimal.

Nous remarquons que le montage utilisé ne permet pas de résoudre les franges d'interférence. En effet, la position entre deux maxima d'intensité est de l'ordre de la longueur d'onde ( $\sim 1 \mu\text{m}$ ) alors que la position du miroir mobile est contrôlée à  $50 \mu\text{m}$  près. La distribution des points de mesure est donc constituée de points de l'interférogramme aléatoirement échantillonnés, dont l'enveloppe évolue comme le contraste des interférences. Expérimentalement, le contraste au délai  $t_n$  est obtenue de la manière suivante,

$$C(t_n) = \frac{\max_{j \in \llbracket n, n+\mathcal{P} \rrbracket}(I_j) - \min_{j \in \llbracket n, n+\mathcal{P} \rrbracket}(I_j)}{\max_{j \in \llbracket n, n+\mathcal{P} \rrbracket}(I_j) + \min_{j \in \llbracket n, n+\mathcal{P} \rrbracket}(I_j)}, \quad (2.3.3)$$

où  $\mathcal{P}$  est le pas sur lequel nous calculons le contraste. Ce pas est arbitraire et des simulations numériques ont montré que dans notre configuration expérimentale, le meilleur choix est  $\mathcal{P} = 10$ . La courbe rouge sur la Figure 2.18 (c) est un ajustement polynomial correspondant au contraste de référence qui sera utilisé pour corriger les contrastes mesurés par la suite.

### Résultats expérimentaux

Nous présentons ci-dessous des mesures de temps de cohérence pour une boîte provenant d'un échantillon de type S1 sous excitation non-résonante et les Figures 2.19 (a) et (b) présentent les contrastes d'interférences pour chacune des deux raies de l'exciton neutre (c) déjà présenté sur la Figure 2.15 (a). Nous avons vu dans la partie 2.3.2 que ces deux raies de luminescence sont polarisées rectilignement et sont orthogonales entre elles ce qui permet de les sélectionner indépendamment en utilisant le montage simple de la Figure 2.15 (b). Enfin, la Figure 2.19 (d) montre le contraste des interférences mesuré lorsque la luminescence totale est envoyée dans l'interféromètre de Michelson (sans polariseur). Nous constatons sans surprise l'existence de battements correspondant à l'existence de deux raies de luminescence séparées en énergie.

Nous avons vu dans la partie 1.3.3.7 que, pour une raie Lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $\Gamma$ , l'intensité en sortie d'interféromètre est donnée par

$$I = 2I_0 \left[ 1 + e^{-|t|/T_2} \cos \left( \frac{2\pi c}{\lambda_0} t \right) \right], \quad (2.3.4)$$

où  $T_2 = 2/\Gamma$  est le temps de cohérence,  $\lambda_0$  la longueur d'onde centrale d'émission,  $c$  la vitesse de la lumière et  $t = c\delta$  avec  $\delta$  la différence de chemin optique entre les deux voies de l'interféromètre. Le contraste des interférences est donc de la forme  $C(t) = e^{-|t|/T_2}$ . Les courbes rouges sur les Figures 2.19 (a) et (b) sont des ajustements donnant respectivement des temps de cohérence de  $T_2^X = 76 \pm 3$  ps et  $T_2^Y = 104 \pm 4$  ps. Les erreurs sont extraites de simulations et sont essentiellement reliées à l'intensité du signal comparé au bruit des APD ( $\sim 300$  coups/s) et à l'intervalle sur lequel est mesuré le contraste comparé à la longueur de cohérence.

Considérons maintenant le cas où les deux raies de luminescence passent par l'interféromètre. Ces deux raies n'interfèrent pas puisqu'elles sont à deux longueurs d'onde distinctes. Dans ce cas, les intensités s'ajoutent et en considérant que le temps de cohérence pour les deux raies est le même, l'intensité de la figure d'interférence est donnée par

$$I = 4I_0 \left[ 1 + e^{-|t|/T_2} \cos \left( \frac{\pi c \Delta \lambda}{\lambda^2} t \right) \cos \left( \frac{2\pi c}{\lambda} t \right) \right], \quad (2.3.5)$$

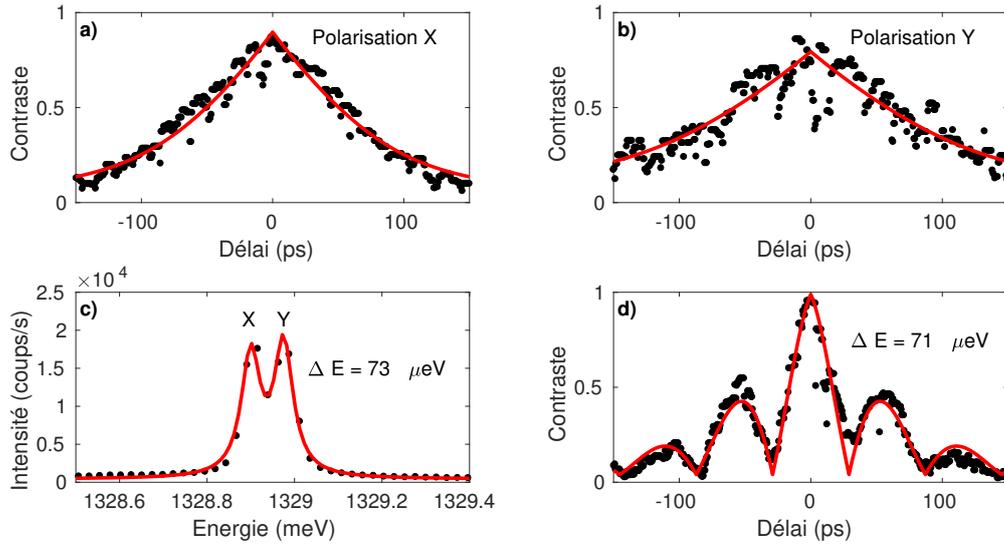


FIGURE 2.19 – Mesure du temps de cohérence de la paire électron-trou neutre sous excitation non-résonante pour une boîte issue d'un échantillon de type S1. (a) et (b) correspondent à la mesure du temps de cohérence de chaque raie individuellement et donnent  $T_2^X = 76 \pm 3$  ps et  $T_2^Y = 104 \pm 4$  ps. (c) et (d) présentent respectivement le spectre de luminescence de la paire électron-trou neutre et le contraste des interférences lorsque le spectre total passe par l'interféromètre de Michelson. L'accord entre ces deux expériences est bon et nous mesurons un écart en énergie de  $\Delta E = 73 \mu\text{eV}$  et  $\Delta E = 71 \mu\text{eV}$ .

où  $\bar{\lambda}$  est la longueur d'onde moyenne des deux raies et  $\Delta\lambda$  l'écart en longueur d'onde. Nous obtenons alors l'expression du contraste représenté par la courbe rouge sur la Figure 2.19 (d) et donné par

$$C(t) = e^{-|t|/T_2} \left| \cos \left( \frac{\pi c \Delta\lambda}{\lambda_0^2} t \right) \right| \quad (2.3.6)$$

Nous en déduisons un écart en énergie entre les deux raies de  $\Delta E = 71 \mu\text{eV}$  en accord avec les mesures de photoluminescence, où le fit du spectre de luminescence présenté Figure 2.19 (c) donne  $\Delta E = 73 \mu\text{eV}$ .

Enfin, en appelant  $T_{\text{osc}}$  la période d'oscillation du contraste, nous avons  $\Delta E = \hbar/\pi T_{\text{osc}}$  ce qui nous permet d'évaluer la résolution de la mesure. En effet, puisque pour pouvoir mesurer  $\Delta E$  il est nécessaire de mesurer  $T_{\text{osc}}$ , ce temps d'oscillation doit être inférieur ou de l'ordre de  $T_2$  afin de distinguer l'oscillation sur le contraste des interférences. L'écart en énergie minimal que nous puissions mesurer est alors donné par  $\Delta E(\mu\text{eV}) \sim 1320/T_2(\text{ps})$ , soit une résolution de  $13 \mu\text{eV}$  et  $1.7 \mu\text{eV}$  pour des temps de cohérence de 100 ps et 800 ps respectivement.

### 2.3.6 Mesure de l'indiscernabilité des photons émis

Comme nous le verrons dans la suite, une partie importante du travail réalisé durant cette thèse concerne les mesures d'indiscernabilité des photons uniques (voir partie 2.3.3) émis par une BQ. Nous donnons ci-dessous, après quelques considérations générales, les détails expérimentaux de ces mesures.

L'indiscernabilité de deux photons est définie de la manière suivante : deux photons sont dits indiscernables s'ils ont le même profil spectral, la même polarisation, le même profil temporel et le même mode spatial. Dans le cas d'une BQ, deux photons émis successivement sont d'autant plus indiscernables que les processus de décohérence ayant lieu pendant le temps séparant les deux émissions sont faibles. Ces processus de décohérence sont dus à l'interaction de la BQ avec la matrice solide qui l'entoure et la constitue : interaction avec les vibrations du réseau cristallin (phonons) [36], avec les charges environnantes [39] ou avec les spins nucléaires [41]. Nous reviendrons en détail dans le chapitre 3 sur ces différentes interactions avec l'environnement. Expérimentalement, l'indiscernabilité est mesurée en faisant interférer deux photons sur une lame 50/50. Dans le cas général, quatre cas de figure sont possibles, comme schématisé Figure 2.20, chaque photon pouvant être soit réfléchi, soit transmis par la lame semi-réfléchissante. Cependant, lorsque les deux photons sont indiscernables, leur caractère bosonique fait qu'ils coalescent sur la lame et empruntent la même voie de sortie [97]. Dans ce cas, nous ne détectons jamais de photon au même instant sur les deux voies de sortie de la lame.

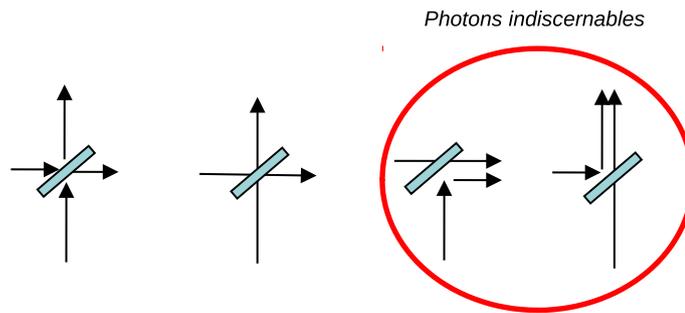


FIGURE 2.20 – Interférence à deux photons sur une lame semi-réfléchissante. Pour des photons discernables les quatre cas de figure en sortie de lame sont équiprobables alors que des photons indiscernables coalescent sur la lame et prennent la même voie de sortie (cercle rouge).

Cette expérience a été réalisée pour la première fois par Hong, Ou et Mandel en 1987 [98, 99], d'où le nom d'expérience de Hong-Ou-Mandel (HOM), et consiste à utiliser un interféromètre de Mach-Zehnder afin de faire interférer deux photons émis à des instants différents. Notre dispositif expérimental est schématisé Figure 2.21 et a été mis en place pour la première fois au laboratoire par Léonard Monniello durant sa thèse qui a précédé la mienne. Une première ligne à retard à la sortie du laser permet de créer deux impulsions d'excitation séparées d'un intervalle de temps  $\Delta\tau = 3$  ns choisi grand devant le temps de vie de la paire électron-trou dans la boîte. Par la suite, les photons émis par la BQ, séparés d'un délai  $\Delta\tau$ , sont collectés dans la fibre optique monomode de collection et envoyés dans un interféromètre de Mach-Zehnder entièrement fibré. Le délai de l'interféromètre compense le retard  $\Delta\tau$  de manière à ce que les photons arrivent au même instant sur la dernière lame séparatrice si le premier photon prend le chemin long et le deuxième le chemin court. Comme dans le cas de l'expérience de HBT décrite dans la partie 2.3.3, les lames séparatrices sont ici des coupleurs de fibre 50/50 qui jouent le même rôle qu'une lame séparatrice grâce à un couplage par ondes évanescentes entre les deux fibres. Le système de détection est le même que

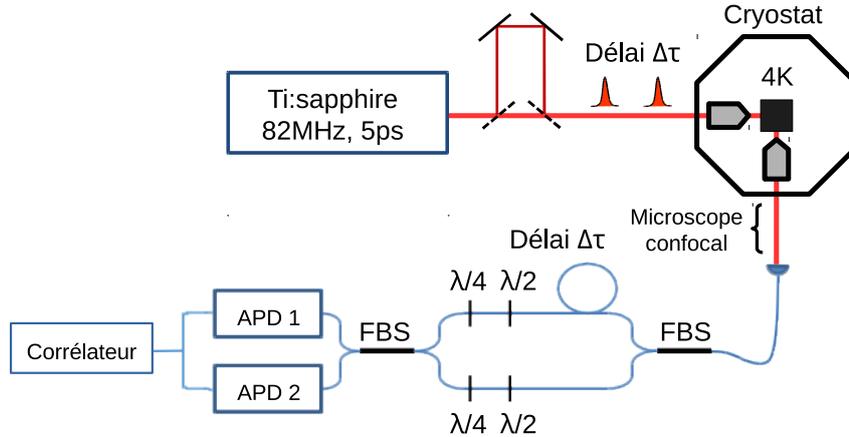


FIGURE 2.21 – Montage expérimental pour la réalisation de l'expérience de Hong-Ou-Mandel (HOM). L'impulsion d'excitation est scindée en deux grâce à une ligne à retard de délai  $\Delta\tau = 3$  ns. Les deux photons émis successivement par la BQ sont couplés à un interféromètre de Mach-Zehnder entièrement fibré possédant une différence de marche  $\Delta\tau$  de manière à ce que les photons puissent arriver au même instant sur la dernière lame 50/50. La biréfringence des fibres optiques est compensée par deux dispositifs (d'enroulement des fibres) agissant comme des lames  $\lambda/2$  et  $\lambda/4$ .

celui utilisé pour les mesures de HBT : un corrélateur permet d'enregistrer le temps d'arrivée des photons sur chaque APD et de construire l'histogramme des coïncidences entre les détections sur les deux APD.

Comme nous l'avons évoqué précédemment, pour être indiscernables deux photons doivent avoir, entre autre, le même profil spatial et la même polarisation. Si la première condition est assurée par l'utilisation de fibres monomodes, la deuxième doit être vérifiée et la biréfringence des fibres optiques compensée pour mesurer correctement l'indiscernabilité des photons émis. Ceci est réalisé grâce à deux dispositifs identiques placés sur chaque bras de l'interféromètre de Mach-Zehnder, agissant comme une succession de lame  $\lambda/2$  et  $\lambda/4$ . Avant de réaliser une expérience de HOM, l'interféromètre est réglé de telle sorte que deux photons entrant avec la même polarisation en ressortent aussi avec la même polarisation. De plus, les lames semi-réfléchissantes fibrées ont en réalité un coefficient de réflexion  $R = 0.43$  et de transmission  $T = 0.57$  ce qui introduit une déviation par rapport au cas idéal prévu. Nous verrons dans le chapitre 3, comment ces coefficients ont été mesurés et comment les déviations par rapport au cas idéal (due aux effets de polarisation et aux lames non parfaitement 50/50) peuvent être prises en compte.

La Figure 2.22 présente l'histogramme de coïncidences pour une boîte d'un échantillon de type S1 sous excitation résonante à  $T = 6.5$  K et pour un temps d'acquisition d'une heure. Le pic central noté 1 (à délai nul) résulte des événements où le premier photon a pris le chemin long et le deuxième le chemin court, alors que les pics 2 et 3 (à  $\pm 3$  ns) correspondent aux événements où les deux photons ont pris le même chemin (court ou long). La signature de l'indiscernabilité de deux photons émis successivement par la BQ est le faible nombre de corrélations à délai nul (pic 1)

comparé aux corrélations à des délais de  $\pm 3$  ns (pics 2 et 3). Pour des photons discernables, le pic 1 aurait la même intensité que les pics 2 et 3. L'indiscernabilité  $\mathcal{I}$  des photons est définie comme

$$\mathcal{I} = 1 - M \quad \text{avec} \quad M = \frac{2A_1}{A_2 + A_3}, \quad (2.3.7)$$

où  $A_i$  ( $i \in \{1, 2, 3\}$ ) est l'intensité intégrée du pic  $i$ . Comme pour les expériences de HBT, les coefficients  $A_i$  sont extraits d'un ajustement en exponentielles décroissantes tracé en rouge Figure 2.22 dont nous justifierons la forme dans le chapitre suivant. De plus, l'indiscernabilité est en réalité corrigée par les imperfections expérimentales (lame semi-réfléchissante 50/50 non idéale, différence de polarisation entre les deux bras de l'interféromètre et présence de laser diffusé) et nous détaillerons les procédures utilisées dans la partie 3.2.3 du chapitre 3.

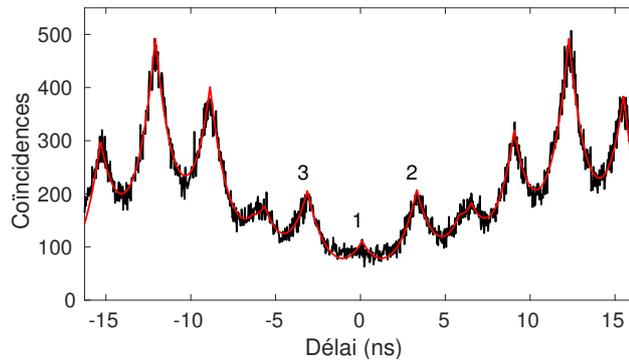


FIGURE 2.22 – Résultat typique d'un histogramme de coïncidences lors d'une expérience de HOM sur une BQ d'un échantillon de type S1, sous excitation résonante à  $T = 6.5$  K et pour un temps d'acquisition d'une heure. Le trait rouge est un ajustement en exponentielles décroissantes. Après correction par les imperfections expérimentales (voir chapitre 3), nous obtenons une indiscernabilité  $\mathcal{I} = 0.79 \pm 0.03$ .

Pour l'histogramme présenté Figure 2.22 nous obtenons une valeur de  $\mathcal{I} = 0.79 \pm 0.03$  après correction et nous constatons que les photons émis sont partiellement indiscernables comme nous pouvions nous y attendre. Nous reviendrons en détails dans le chapitre 3, sur la manière d'analyser les résultats d'une telle mesure et de relier la perte d'indiscernabilité aux processus de décohérence dus à l'interaction d'une BQ avec son environnement.

## 2.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les intérêts et les difficultés expérimentales liées à l'excitation résonante de BQ uniques. Nous avons vu que l'excitation résonante permet de minimiser les processus de décohérence liés à la capture et à la relaxation des porteurs lors d'une excitation non résonante. Après avoir décrit la structure des échantillons étudiés durant cette thèse, nous avons présenté la géométrie guidée qui nous a permis de réaliser l'excitation résonante de boîtes uniques.

Dans un deuxième temps, nous avons présenté les différentes expériences réalisables avec notre système expérimental : mesure de photoluminescence, caractérisation de la polarisation des photons émis par une BQ, étude de la statistique d'émission, mesures de temps de vie de l'état excité, ainsi

que de son temps de cohérence par STF. Enfin nous avons présenté la configuration expérimentale nous permettant de réaliser des interférences à deux photons pour la mesure de l'indiscernabilité des photons émis par une BQ.

## Chapitre 3

# Mesures d'indiscernabilité pour l'étude de l'interaction électron-phonon

## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>87</b>
<b>3.2</b>	<b>Boîte quantique en interaction avec son environnement</b>	<b>88</b>
3.2.1	Les différents processus d'interaction	88
3.2.2	Interférences à un photon	89
3.2.3	Interférences à deux photons	91
3.2.3.1	Quantité mesurée	92
3.2.3.2	Indiscernabilité et champ émis par une boîte quantique	93
3.2.3.3	Prise en compte du laser diffusé dans les mesures d'indiscernabilité	95
3.2.3.4	Prise en compte des imperfections expérimentales de l'interféromètre de Mach-Zehnder	97
3.2.4	Temps de cohérence et indiscernabilité	98
3.2.5	Expériences en température pour l'étude de l'interaction électron-phonon	102
<b>3.3</b>	<b>Indiscernabilité et interaction électron-phonon</b>	<b>103</b>
3.3.1	Système considéré et hamiltonien	104
3.3.1.1	Hamiltonien d'interaction électron-phonon	104
3.3.1.2	Hamiltonien effectif d'interaction électron-phonon	105
3.3.1.3	Retour au problème considéré	108
3.3.2	Transformation polaron	110
3.3.3	Évolution temporelle	111
3.3.3.1	Dérivation de l'équation maîtresse	111
3.3.3.2	Résolution de l'équation maîtresse	112
3.3.4	Spectre de luminescence et ailes phonons	113
3.3.4.1	Utilisation du théorème de Wiener-Khinchin	113
3.3.4.2	Raie zéro-phonon et ailes phonons	114
3.3.5	Calcul de l'indiscernabilité	117
3.3.6	Comparaison aux données expérimentales	118
<b>3.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>120</b>

---

### 3.1 Introduction

Depuis les années 2000 où Santori *et al* ont montré que les BQ sont une source de photons uniques [26] et partiellement indiscernables [28], leur potentielle utilisation comme briques élémentaires pour des applications en information quantique [32, 100, 101] en a fait un sujet d'étude important pour les physicien-ne-s. Par exemple, He *et al* [102] ont mis en évidence que les photons émis par une BQ peuvent être utilisés pour réaliser une porte C-NOT, qui constitue l'une des opérations élémentaires en calcul quantique. De nombreux travaux ont mis en évidence que les BQ sont d'excellentes source de photons uniques et indiscernables, Ding *et al* ayant par exemple mesuré un degré d'unicité de 99.1% et d'indiscernabilité de 98.5% [88]. L'efficacité de collection des photons émis étant aussi un enjeu important pour d'éventuelles applications, plusieurs groupes [88, 103] utilisent des cavités avec des facteurs de qualité très élevés (pouvant atteindre des dizaines de milliers) afin de réduire le temps de vie radiatif par effet Purcell [104] et maximiser ainsi le nombre de photons émis. De plus, l'émission se faisant dans une direction privilégiée, il est possible d'atteindre des efficacités de collection de l'ordre de 80%. Les BQ sont par ailleurs, un système modèle pour l'étude de processus physiques fondamentaux, comme par exemple l'intrication spin-photon [105]. Elles constituent également par nature un système ouvert, ce qui permet l'étude fondamentale de l'interaction avec leur environnement [106, 107].

Dans les chapitres précédents, nous avons introduit le formalisme nécessaire à la description de l'interaction lumière - BQ, ainsi que le dispositif expérimental utilisé pour l'étude de BQ uniques sous excitation résonante. Nous avons en particulier présenté deux expériences en mesure de nous renseigner sur les processus de décohérence dus à l'interaction d'une BQ avec son environnement : la mesure du temps de cohérence des photons émis par spectroscopie par transformée de Fourier (STF), et la mesure de leur indiscernabilité grâce à des interférences à deux photons dans un dispositif de type HOM.

Dans ce chapitre, nous mettons en évidence le fait que des expériences d'interférences à deux photons ne sont sensibles qu'à l'interaction de la BQ étudiée avec les vibrations du réseau cristallin lorsque les photons qui interfèrent sont émis avec un délai de l'ordre de la nanoseconde. Ces mesures permettent donc d'étudier l'interaction entre les excitations électroniques de la BQ et les phonons acoustiques de la matrice solide de GaAs. Nous présentons également les résultats obtenus lorsque la température de l'échantillon varie. Dans la deuxième partie, nous détaillons le modèle théorique utilisé nous permettant d'obtenir une expression analytique de l'indiscernabilité des photons émis en fonction de la température. Nous identifions deux mécanismes distincts responsables de la perte de la visibilité, des transitions réelles assistées par phonons à l'origine d'une luminescence très large spectralement, communément appelée "ailes phonons" et notée PSB dans la suite (pour *phonon side band* en anglais), et des transitions virtuelles assistées par phonons, dues à la présence d'états excités de plus haute énergie dans la boîte et à l'origine d'un élargissement de la raie zéro phonon, notée ZPL dans la suite (pour *zero phonon line* en anglais).

## 3.2 Boîte quantique en interaction avec son environnement

### 3.2.1 Les différents processus d'interaction

Nous avons vu dans le premier chapitre que le couplage d'une BQ (modélisée par un système à deux niveaux) avec le champ électromagnétique entraîne l'existence d'un temps de vie fini de l'état excité, ou autrement dit, l'existence d'une largeur de raie associée à un temps de cohérence pour les photons émis, tel que  $T_2 = 2T_1$ . En réalité, à la différence des systèmes atomiques, une BQ est fortement couplée au réseau cristallin qui l'entoure et la constitue. Ainsi, il est important de prendre en compte ce couplage supplémentaire pour comprendre les phénomènes observés expérimentalement.

La première de ces interactions avec l'environnement est due aux vibrations de la matrice solide qui constitue la boîte. En effet, lorsque nous avons introduit la structure de bande des semiconducteurs massifs dans la partie 1.2.1, nous avons considéré que la position des ions constituant le réseau était fixe. En réalité, le réseau cristallin vibre, et il est nécessaire de prendre ce mouvement en compte en introduisant un terme d'interaction électron-phonon dans le hamiltonien [108]. Deux types de vibrations peuvent intervenir, les phonons acoustiques et optiques du réseau cristallin de GaAs qui entoure la BQ et, généralement, ces vibrations sont traitées comme étant celles du semi-conducteur massif. Pour les processus d'excitation résonante, les énergies entrant en jeu sont faibles et seuls les phonons acoustiques interviennent, les phonons optiques se trouvant à plus 30 meV au-dessus de la raie de luminescence [109, 110]. Dans la pratique, le couplage aux phonons acoustiques entraîne un élargissement de la raie de luminescence et l'apparition d'un fond large, les PSB, dues à des processus d'absorption et d'émission de phonons comme présenté Figure 3.1 (a) haut. Cette interaction se traduit aussi par un amortissement rapide de l'oscillation de Rabi comme mis en évidence par Ramsay *et al* [36, 111] par des mesures de photo-courant ainsi que par Monniello *et al* [44] par des mesures de photoluminescence (voir Figure 3.1 (a) bas). Nous verrons plus loin que le temps caractéristique d'interaction avec les phonons est de l'ordre de la picoseconde.

Le deuxième processus d'interaction avec l'environnement est dû au fait que le champ électrique local fluctue au niveau d'une BQ puisque celle-ci se trouve généralement à proximité de défauts structuraux qui peuvent agir comme des puits de potentiel pour les porteurs photo-crées, ou présents à cause du dopage résiduel [37, 92]. Sur la Figure 3.1 (b) droite, issue de [37], les auteurs sont parvenus à localiser les défauts présents à proximité de la BQ étudiée. Ces puits de potentiel peuvent alors capturer ou relâcher des porteurs, ce qui a pour conséquence de déplacer de quelques  $\mu\text{eV}$  la transition optique par effet Stark [37, 92], comme mis en évidence Figure 3.1 (b) gauche. Nous pouvons en effet constater sur cette figure extraite de [37] la présence de plusieurs pics correspondant à la luminescence de la BQ pour différents états de charge de piège environnants. Arnold *et al*, ont récemment mis en évidence, par des expériences de réflectivité résolue en temps, que ces fluctuations de charges se font sur des temps de l'ordre de la microseconde [113]. En conséquence, les expériences de luminescence mesurées avec des temps d'acquisition supérieurs à la microseconde montrent des raies élargies de manière inhomogène<sup>1</sup> par ce processus appelé *diffusion spectrale*, et nous nous y intéresserons en détail dans la partie suivante.

Enfin, le troisième processus d'interaction d'une BQ avec son environnement est dû à l'interac-

---

1. Nous parlons d'élargissement homogène lorsque la raie de luminescence est élargie en gardant un profil lorentzien et d'élargissement inhomogène si le profil n'est plus lorentzien.

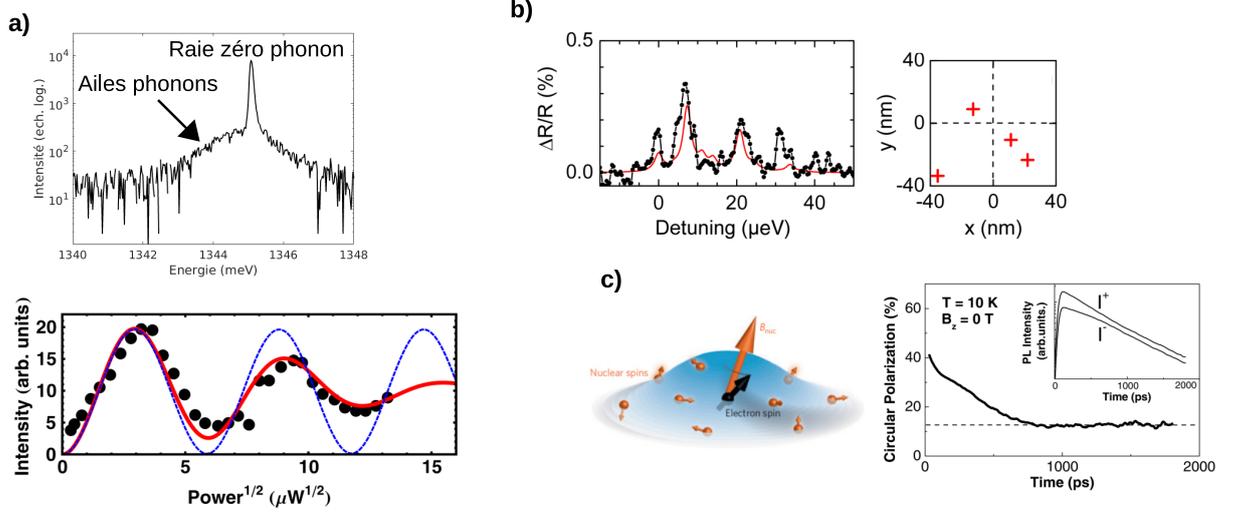


FIGURE 3.1 – Processus d’interaction d’une BQ avec son environnement. (a) Spectre de luminescence d’une BQ sous excitation résonante. L’interaction avec les vibrations de la matrice solide (phonons) conduit à l’apparition des PSB dans le spectre de luminescence et à l’amortissement de l’oscillation de Rabi [44]. (b) Interaction avec les charges environnantes fluctuantes qui déplacent la raie de luminescence de quelques  $\mu\text{eV}$  par effet Stark [37]. (c) Relaxation d’un spin dans une BQ dû à l’interaction avec les spin nucléaires [112].

tion du spin des porteurs présents dans la boîte avec les spins nucléaires des ions constituant la matrice solide. Ce processus, schématisé Figure 3.1 (c) gauche, entraîne qu’en l’absence de champ magnétique extérieur, un spin préparé dans un état de polarisation donné, relaxe rapidement dû au couplage avec les spins nucléaires comme mis en évidence par Braun *et al* [112] et présenté Figure 3.1 (c) droite. Dans la suite, nous ne nous intéresserons pas à ce processus, bien qu’il puisse être à l’origine d’un déphasage résiduel [114, 38].

### 3.2.2 Interférences à un photon

Nous avons vu dans la partie 2.3.5 que la mesure du temps de cohérence des photons émis par une BQ peut être réalisée grâce à un dispositif de STF. En effet, ce procédé expérimental permet de connaître la largeur de la raie de luminescence ainsi que sa forme, puisque nous avons vu dans la partie 1.3.3.7 que le contraste mesuré par une telle expérience correspond à la transformée de Fourier de la raie de luminescence. Ainsi, la mesure du temps de cohérence des photons émis par une BQ nous renseigne sur les processus d’interaction de la boîte avec son environnement et il est possible d’introduire un temps caractéristique  $T_2^*$ , appelé temps de ”déphasage pur” [115], défini par

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*}. \quad (3.2.1)$$

$T_2^*$  tient compte de tous les processus de décohérence autres que ceux dus au couplage avec le champ électromagnétique, entraînant  $T_2 \leq 2T_1$ .

Considérons une boîte sujette uniquement au phénomène de diffusion spectrale. La dynamique des charges piégées aux alentours de la boîte a pour conséquence, à cause de l'effet Stark, un décalage de quelques  $\mu\text{eV}$  de la raie de luminescence (qui est de largeur  $\Gamma$  si on ne considère pas d'autre processus d'interaction) par rapport à sa position centrale, sur des temps caractéristiques de l'ordre de la microseconde [113]. Ainsi, une expérience de STF (ou de mesure directe de la luminescence) dont le temps d'acquisition est grand devant la microseconde, ne mesure que la moyenne de toutes les configurations possibles, et la raie effectivement mesurée sera élargie par ce phénomène de diffusion spectrale. En considérant que les pièges aux alentours de la BQ sont aléatoirement remplis, l'effet Stark dû aux charges fluctuantes environnantes entraîne une distribution gaussienne de la position centrale de la raie de luminescence  $D(\omega)$ , l'intensité totale  $I(\omega)$  étant alors donnée par le produit de convolution de la distribution en intensité d'une boîte uniquement couplée au champ électromagnétique  $\mathcal{P}(\omega)$  (voir Eq. 1.3.70), et de la gaussienne caractérisant la distribution des décalages en énergie. Nous avons alors

$$I(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu \mathcal{P}(\omega - \nu) D(\nu) \quad \text{avec} \quad D(\nu) = \frac{e^{-\left(\frac{\nu - \nu_0}{\nu_d}\right)^2}}{\nu_d \sqrt{\pi}} \quad (3.2.2)$$

où  $\nu_d$  est la largeur à  $1/e$  de la distribution gaussienne des décalages en énergie et où  $\nu_0$  est la position centrale de la raie d'émission en l'absence d'effet Stark. Le contraste d'interférences, donné par la transformée de Fourier de l'intensité, sera donc le produit d'une exponentielle décroissante est d'une gaussienne,

$$C(t) = e^{-\frac{|t|}{2T_1}} \times e^{-\left(\frac{t}{\tau_d}\right)^2}, \quad (3.2.3)$$

où  $\tau_d$  est le temps caractéristique associé au phénomène de diffusion spectrale. Dans la pratique, les temps de vie radiatif et de diffusion spectrale diffèrent de trois ordres de grandeurs et le contraste  $C(t)$  donnée par l'expression (3.2.3) appelé profil de Voigt, ne permet pas d'ajuster correctement les résultats expérimentaux. Nous utilisons plutôt un profil dit "pseudo-Voigt" qui consiste à définir un temps de cohérence effectif  $T_2 \neq 2T_1$ , prenant en compte l'interaction avec les charges fluctuantes, ainsi qu'un paramètre  $\eta$  caractérisant l'élargissement inhomogène de la raie, ces deux nouveaux paramètres étant fonction de  $T_1$  et de  $\tau_d$ . Le profil pseudo-Voigt est alors défini par :

$$f(t) = (1 - \eta)e^{-|t|/T_2} + \eta e^{-(t/T_2)^2}, \quad (3.2.4)$$

et cette expression permet d'extraire la contribution inhomogène  $\eta$  associée au phénomène de diffusion spectrale, ainsi que le temps de cohérence *effectif*  $T_2$  des photons émis. Une description

	QD 1	QD 2	QD 3	Erreurs
$T_2/2T_1$	0.35	0.23	0.71	10 - 15 %
$\eta$	0.45	0.55	0.10	$\pm 0.1$

TABLE 3.1 – Valeurs des rapports  $T_2/2T_1$  et des contributions inhomogènes mesurées par STF pour les trois BQ étudiées. Les erreurs sont extraites de simulations numériques prenant en compte l'échantillonnage des données lors de la mesure, ainsi que la procédure d'extraction des paramètres  $\eta$  et  $T_2$ .

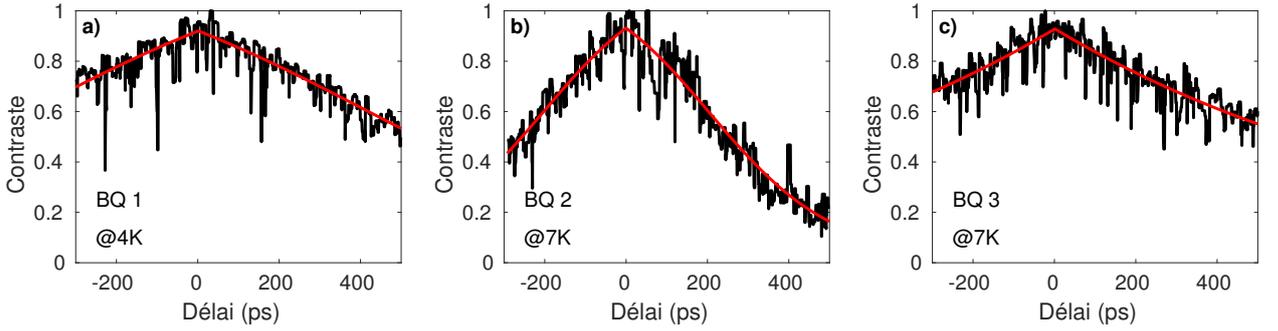


FIGURE 3.2 – *Contraste d’interférences obtenu par STF pour les trois BQ étudiées. Le temps d’acquisition pour chaque position du miroir mobile est d’une seconde ce qui signifie que cette mesure prend en compte tout les processus de décohérence ayant lieu sur des échelles de temps plus courtes. Les contrastes sont ajustés par un profil pseudo-Voigt en rouge.*

plus fine de ces processus d’interaction avec les charges environnantes fluctuantes peut être trouvé dans la référence [39].

La Figure 3.2 présente les contrastes d’interférences mesurés, pour trois BQ différentes, par STF en suivant la procédure décrite dans la partie 2.3.5. Nous donnons dans la Table 3.1 les valeurs du rapport  $T_2/2T_1$  pour chaque boîte ainsi que les contributions inhomogènes à la largeur de raie, extraites grâce aux ajustements pseudo-Voigt représentés en rouge sur la Figure 3.2. Nous constatons que plus la contribution inhomogène est importante, plus le rapport  $T_2/2T_1$  est faible, ce qui semble indiquer que la diffusion spectrale due à l’interaction avec les charges environnantes, est la principale cause de la perte de cohérence des photons émis par une BQ et mesurée par STF. Nous verrons plus loin dans ce chapitre que cette hypothèse est confirmée par les mesures d’indiscernabilité sur ces mêmes BQ.

### 3.2.3 Interférences à deux photons

Nous nous proposons dans cette partie de définir la quantité mathématique mesurée lors d’une expérience d’interférences à deux photons en suivant la méthodologie proposée par Kiraz *et al* [116]. Rappelons que la configuration expérimentale se résume à une lame semi-réfléchissante 50/50 dont les deux voies de sortie sont munies de détecteurs de photons uniques (APD) comme représenté Figure 3.3 (a). L’une de ces APD est reliée à la voie *start* d’un corrélateur et l’autre à la voie *stop*, ce qui nous permet d’enregistrer l’histogramme de coïncidences qui nous renseigne sur la probabilité de mesurer un photon sur la voie *stop* à l’instant  $(t + \tau)$  sachant qu’un photon a été mesuré sur la voie *start* à l’instant  $t$ . Comme schématisé Figure 3.3 (b), nous noterons  $\hat{E}_1(t)$  et  $\hat{E}_2(t)$  les champs électriques incidents et  $\hat{E}_3(t)$  et  $\hat{E}_4(t)$  les champs sortants de la lame semi-réfléchissante.

Nous considérerons que les imperfections expérimentales sont essentiellement dues à la présence de photons du laser, collectés par l’objectif de détection, et au fait que la lame semi-réfléchissante sur laquelle interfèrent les photons n’est pas parfaitement 50/50. Nous ne tiendrons pas compte de la polarisation des photons puisque dans le cas d’une mesure de type HOM, nous avons vu dans la partie 2.3.6 que la polarisation est choisie identique dans les deux bras de l’interféromètre, avec une erreur inférieure au pourcent. De plus, l’utilisation d’un interféromètre fibré avec des

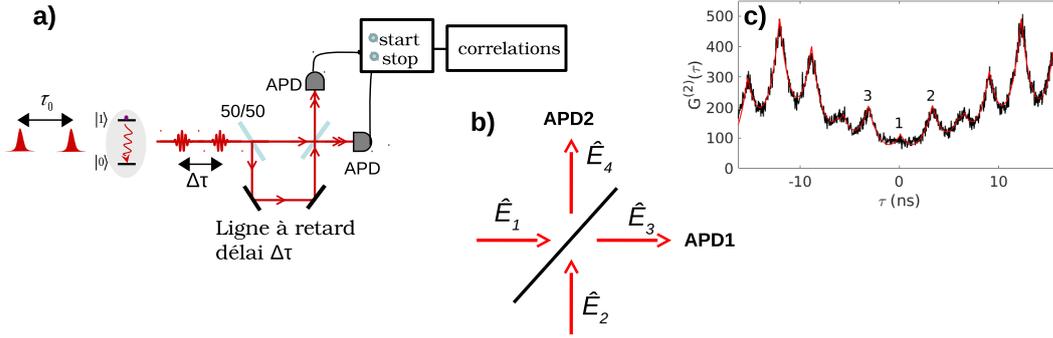


FIGURE 3.3 – (a) Schéma de principe d'une expérience de type HOM pour la réalisation d'interférences à deux photons. (b) lame semi-réfléchissante où interfèrent les photons : s'ils sont indiscernables, ils coalescent et empruntent la même voie de sortie. (c) Histogramme des coïncidences pour une expérience de type HOM.

fibres monomodes permet de s'assurer du bon recouvrement du mode spatial des deux photons qui interfèrent, et nous supposons dans la suite que ces modes sont les mêmes.

### 3.2.3.1 Quantité mesurée

La quantité correspondant à la mesure de la probabilité conditionnelle de détection d'un photon sur la voie 4 à l'instant  $(t + \tau)$  sachant qu'un photon a été détecté sur la voie 3 à l'instant  $t$ , s'écrit

$$G^{(2)}(t, \tau) = \langle \hat{E}_3^\dagger(t) \hat{E}_4^\dagger(t + \tau) \hat{E}_4(t + \tau) \hat{E}_3(t) \rangle. \quad (3.2.5)$$

Le champ électrique, donné Eq. (1.3.42), s'écrit en représentation Heisenberg pour la voie  $j$

$$\hat{E}_j(t) = \hat{E}_j^{(+)}(t) + \hat{E}_j^{(-)}(t) \quad \text{avec} \quad \hat{E}_j^{(-)}(t) = (\hat{E}_j^{(+)}(t))^\dagger = \sum_n \varepsilon_n \hat{a}_{j,n}^\dagger(t), \quad (3.2.6)$$

où  $\varepsilon_n = -i\sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}}$  et où  $L^3$  est le volume de quantification du champ électromagnétique. Comme dans l'annexe E, il est utile de remarquer que le champ électromagnétique total est souvent difficile à mesurer puisque la plupart des observations sont liées à l'absorption de la lumière [117, 118, 119]. Par exemple, un photodétecteur ne mesure qu'un nombre de photons. La quantité réellement mesurée par nos appareils de mesure est donc de la forme

$$G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau) = \langle \hat{E}_3^{(-)}(t) \hat{E}_4^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_4^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_3^{(+)}(t) \rangle, \quad (3.2.7)$$

puisque dans ce cas, la définition des opérateurs  $\hat{E}_i^{(\pm)}(t)$  montre que  $G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau)$  est de la forme  $\langle \hat{a}_3^\dagger(t) \hat{a}_4^\dagger(t + \tau) \hat{a}_4(t + \tau) \hat{a}_3(t) \rangle$ , qui mesure bien le nombre de photons sur les voies 3 et 4 aux instants  $t$  et  $(t + \tau)$  respectivement.

En revenant à des considérations expérimentales, nous constatons que dans des mesures de corrélations de photons, comme celle présentée Figure 3.3 (c), nous accumulons un grand nombre de corrélations, de manière à reconstruire l'histogramme des coïncidences des photons émis. Mathématiquement, cette opération revient à prendre l'intégrale sur  $t$  de l'expression (3.2.7) et l'histogramme

de la Figure 3.3 (c) nous donne donc directement accès à la fonction de corrélation  $G^{(2)}(\tau)$  qui est proportionnelle à la probabilité de détecter un photon sur l'APD 2 à l'instant  $\tau$  sachant qu'un photon a été détecté sur l'APD 1 à  $\tau = 0$ ,

$$G^{(2)}(\tau) = \int_0^{+\infty} dt \langle \hat{E}_3^{(-)}(t) \hat{E}_4^{(-)}(t+\tau) \hat{E}_4^{(+)}(t+\tau) \hat{E}_3^{(+)}(t) \rangle. \quad (3.2.8)$$

De plus, nous rappelons que l'indiscernabilité des photons émis par une BQ a été défini dans le chapitre 2 comme<sup>1</sup>

$$\mathcal{I} = 1 - M \quad \text{avec} \quad M = \frac{2A_1}{A_2 + A_3}, \quad (3.2.9)$$

où  $A_1$ ,  $A_2$  et  $A_3$  sont les intensités intégrées des pics numérotés 1, 2 et 3 sur l'histogramme de coïncidences de la Figure 3.3 (c), obtenues à partir de l'ajustement explicité dans la partie 3.2.3.3. Mathématiquement, cette opération revient à intégrer la fonction de corrélation  $G^{(2)}(\tau)$  sur les pics 1, 2 et 3, ce qui entraîne par exemple que le paramètre  $A_1$ , intervenant dans l'expression de l'indiscernabilité donnée Eq. (3.2.9), est de la forme

$$\begin{aligned} A_1 &= \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau G^{(2)}(\tau) \\ &= \int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau). \end{aligned} \quad (3.2.10)$$

De même, le facteur de normalisation intervenant dans l'expression de  $M$  est l'intensité intégrée d'un pic aux délais  $\pm 3$  ns. Nous verrons dans la partie suivante qu'il correspond à la probabilité de détecter un photon à l'instant  $t$  sur la voie 3 et un autre à l'instant  $(t + \tau)$  sur la voie 4, ce qui permet bien de normaliser la probabilité conditionnelle intervenant au numérateur. Le facteur  $M$  intervenant dans l'expression de l'indiscernabilité est donc de la forme

$$M = \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau)}{\int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } \Delta\tau} d\tau G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau)}, \quad (3.2.11)$$

où nous avons intégré au dénominateur soit sur le pic 2, soit sur le pic 3, avec  $\Delta\tau = 3$  ns. Nous retrouvons finalement l'expression (12) donnée par Kiraz *et al* [116].

### 3.2.3.2 Indiscernabilité et champ émis par une boîte quantique

Pour la suite, il est nécessaire de connaître les champs  $\hat{E}_3(t)$  et  $\hat{E}_4(t)$  sortant de la lame semi-réfléchissante (voir Figure 3.3 (b)). Ils peuvent être exprimés en fonction des champs incidents grâce à la matrice de transfert [120, 116],

$$\begin{pmatrix} \hat{E}_3(t) \\ \hat{E}_4(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sqrt{T} & -e^{-i\varphi}\sqrt{R} \\ e^{i\varphi}\sqrt{R} & \sqrt{T} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{E}_1(t) \\ \hat{E}_2(t) \end{pmatrix} \quad (3.2.12)$$

où  $R$  et  $T$  sont les coefficients de réflexion et de transmission de la lame semi-réfléchissante tels que  $R + T = 1$ , et  $\varphi$  un facteur de phase sans importance dans la suite. Nous pouvons alors exprimer

---

1. Nous verrons plus loin dans cette partie que le paramètre  $M$  est en réalité corrigé de manière à prendre en compte la présence de laser diffusé.

$G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau)$  en fonction des champs incidents,

$$\begin{aligned}
 G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau) = & -RT \langle \hat{E}_1^{(-)}(t) \hat{E}_2^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_1^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t) \rangle \\
 & + R^2 \langle \hat{E}_1^{(-)}(t) \hat{E}_2^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_1^{(+)}(t) \rangle \\
 & - RT \langle \hat{E}_2^{(-)}(t) \hat{E}_1^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_1^{(+)}(t) \rangle \\
 & + T^2 \langle \hat{E}_2^{(-)}(t) \hat{E}_1^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_1^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t) \rangle.
 \end{aligned} \tag{3.2.13}$$

Nous supposons dans la suite que le mode spatial des photons incidents est strictement le même dans les deux voies. De plus, les deux photons qui interfèrent sont indépendants puisqu'ils sont émis à 3 ns d'intervalle. En supposant que les valeurs moyennes et les fonctions de corrélation du champ sont les mêmes, nous pouvons écrire par exemple, le premier terme de l'équation précédente

$$\begin{aligned}
 \langle \hat{E}_1^{(-)}(t) \hat{E}_2^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_1^{(+)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t) \rangle & = \langle \hat{E}_1^{(-)}(t) \hat{E}_1^{(+)}(t + \tau) \rangle \langle \hat{E}_2^{(-)}(t + \tau) \hat{E}_2^{(+)}(t) \rangle \\
 & = \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t + \tau) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \\
 & = |\langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle|^2,
 \end{aligned} \tag{3.2.14}$$

où  $\hat{E}^{(\pm)}$  est le champ émis par la BQ. Nous pouvons donc réécrire  $G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau)$  sous la forme

$$G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau) = (R^2 + T^2) \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t + \tau) \rangle - 2RT |G^{(1)}(t, \tau)|^2, \tag{3.2.15}$$

où  $G^{(1)}(t, \tau) = \langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle$  est la fonction de corrélation d'ordre 1 du champ émis par la boîte. En revenant à l'expression du paramètre  $M$  donné par l'Eq. (3.2.11), nous remarquons que dans le facteur de normalisation intervenant au dénominateur, l'intégrale est prise sur le pic à  $\pm \Delta\tau$ . Nous pouvons faire le changement de variable  $\tau = \pm \Delta\tau + \tau'$ , où  $\Delta\tau = 3 \text{ ns}$ , et le dénominateur devient

$$\begin{aligned}
 \int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } \pm \Delta\tau} d\tau G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \tau) & = \int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau' G_{\text{mes}}^{(2)}(t, \pm \Delta\tau + \tau') \\
 & = (R^2 + T^2) \int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t + \tau) \rangle
 \end{aligned} \tag{3.2.16}$$

où le fait que  $\Delta\tau$  soit grand devant le temps de cohérence des photons, entraîne que  $G^{(1)}(t, \pm \Delta\tau + \tau')$  est nul autour de  $\tau' = 0$  et où nous avons utilisé la périodicité en  $\Delta\tau$  de  $\langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t + \tau) \rangle$ . Comme nous l'avons mentionné dans la partie 3.2.3.1, nous constatons que le facteur de normalisation de  $M$  correspond bien à la probabilité de détecter un photon sur la voie 3 à l'instant  $t$  et un sur la voie 4 à l'instant  $(t + \tau)$ . Nous en déduisons que

$$M = 1 - \frac{2RT}{R^2 + T^2} \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau |G^{(1)}(t, \tau)|^2}{\int_0^{+\infty} dt \int_{\text{Pic } 0 \text{ ns}} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau) \hat{E}^{(+)}(t + \tau) \rangle}, \tag{3.2.17}$$

qui est bien l'expression donnée dans [116].

Dans la partie 1.3.3, nous avons étudié le couplage entre un système à deux niveaux initialement dans son état excité et le champ électromagnétique et nous avons, à cette occasion, développé un modèle dans lequel nous ne considérons qu'un unique photon émis par la BQ. Ceci a pour conséquence que les fonctions de corrélations apparaissant dans l'expression de  $M$  ci-dessus, ne

possèdent en réalité qu'un pic à délai nul<sup>1</sup>. Nous en concluons qu'il est possible d'étendre les bornes d'intégration sur  $\tau$  à l'infini, et en utilisant la parité des fonctions de corrélations nous obtenons l'expression de l'indiscernabilité mesuré dans un montage de type HOM,

$$\mathcal{I}_{\text{mes}} = \frac{2RT}{R^2 + T^2} \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau |G^{(1)}(t, \tau)|^2}{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t+\tau) \rangle}. \quad (3.2.18)$$

Le coefficient  $2RT/(R^2 + T^2)$ , compris entre 0 et 1, met en évidence le fait qu'une lame non 50/50, introduit une atténuation de la mesure de l'indiscernabilité. Nous estimerons par la suite la valeur des coefficients de réflexion et de transmission  $R$  et  $T$ , et les mesures d'indiscernabilité seront systématiquement corrigées par les imperfections expérimentales. C'est la raison pour laquelle dans la partie 3.3 nous calculerons  $\mathcal{I}$ , l'indiscernabilité des photons émis dans le cas d'une lame semi-réfléchissante idéale, donnée par

$$\mathcal{I} = \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau |\langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle|^2}{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t+\tau) \rangle}. \quad (3.2.19)$$

Nous pouvons vérifier en utilisant les résultats de la partie 1.3.3, que pour une BQ couplée uniquement au champ électromagnétique,  $\mathcal{I} = 1$ . Nous verrons, dans la suite de ce chapitre, comment le couplage aux vibrations du réseau cristallin entraîne une baisse de l'indiscernabilité des photons émis.

### 3.2.3.3 Prise en compte du laser diffusé dans les mesures d'indiscernabilité

Nous avons déjà mentionné qu'une mesure d'indiscernabilité peut être altérée si des photons provenant du laser d'excitation passent dans l'interféromètre de Mach-Zehnder. Étant donné que dans nos expériences, nous n'effectuons pas de filtrage spectral, les photons du laser qui ne sont pas exactement à la même énergie que ceux de la boîte sont discernables, et donc ne coalescent pas sur la lame semi-réfléchissante, contribuant aux corrélations à délai nul. Il est donc nécessaire de prendre en compte la proportion de photons laser collectés afin de corriger l'histogramme de coïncidences. Ceci est possible grâce à la mesure de l'unicité des photons émis, réalisée dans une expérience de type HBT, qui nous renseigne précisément sur la proportion de laser diffusé et collecté par l'objectif de détection. Nous présentons dans cette partie la méthode utilisée pour réaliser cette correction.

La Figure 3.4 présente les histogrammes de coïncidences obtenus après une heure d'acquisition pour des expériences de type HOM (a) et HBT (b), réalisées sur la même BQ à 4 K, et dans les mêmes conditions expérimentales<sup>1</sup>. Afin de prendre en compte la présence des photons laser, et en supposant que toutes les corrélations à délai nul dans une mesure HBT sont dues au laser, le paramètre  $M$  caractérisant l'indiscernabilité et défini Eq. (2.3.7), est donné par

$$M = \frac{2B_1}{B_2 + B_3} \quad \text{avec} \quad B_i = A_i^{\text{HOM}} - 2 \frac{T_{\text{HOM}}}{T_{\text{HBT}}} A_i^{\text{HBT}} \quad (3.2.20)$$

1. Nous vérifions d'ailleurs que la fonction de corrélation définie Eq. (1.3.66) n'a qu'une contribution autour de  $\tau = 0$ .

1. La forme inhabituelle de l'histogramme de coïncidences pour l'expérience de HBT vient du fait que celle-ci est réalisée dans le dispositif expérimental de type HOM représenté Figure 3.5 (a) (c'est-à-dire que les photons empruntent les deux chemins de l'interféromètre), ce qui nous permet d'utiliser la procédure de correction présentée ici.

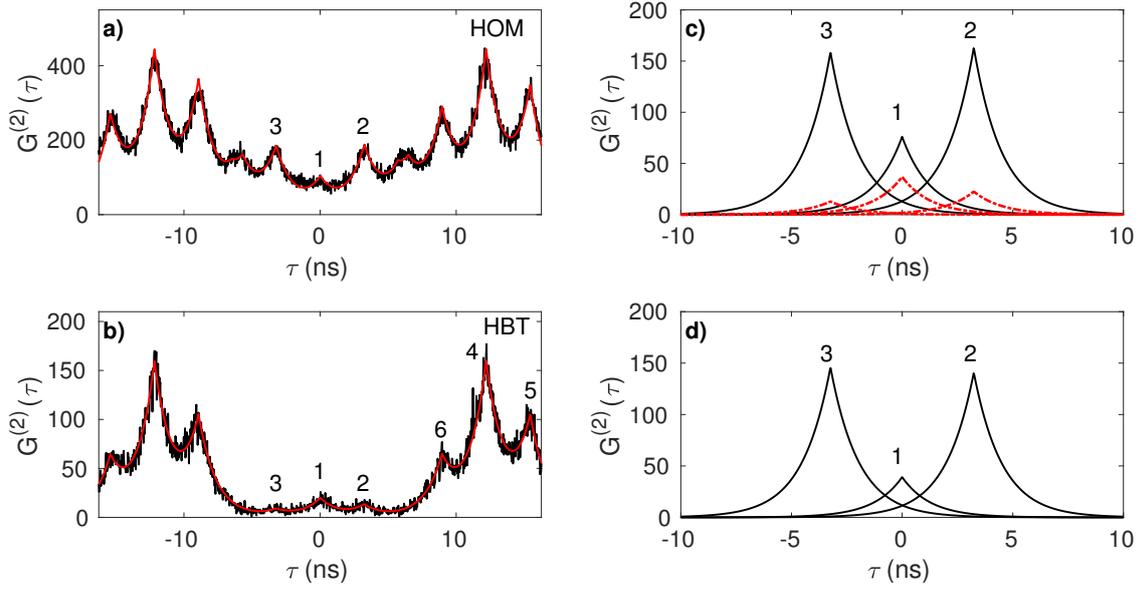


FIGURE 3.4 – Méthodologie pour la correction d’une expérience HOM par la quantité de photons laser collectés et mesurés par HBT. Histogrammes de coïncidences pour des expériences de type HOM (a) et HBT (b) pour une heure d’acquisition à 4K. Traits rouge : ajustements en exponentielle décroissante permettant d’extraire la contribution de chaque pic malgré leur recouvrement. (c) Ajustements des trois pics centraux pour les expériences HOM (trait plein noir) et HBT (pointillé rouge) multiplié par un facteur 2 dans le dernier cas. (d) Résultat de la procédure de correction permettant d’obtenir le paramètre  $M$  et donc l’indiscernabilité des photons émis.

où  $A_i^{HOM}$  et  $A_i^{HBT}$  sont les intensités intégrées des pics numérotés  $i$  sur les Figures 3.4 (a) et (b), et où  $T_{HOM}$  et  $T_{HBT}$  sont les temps d’acquisition des mesures de HOM et HBT respectivement. Cette correction permet bien de prendre en compte les photons laser puisque nous retranchons les coïncidences mesurées au HBT, qui caractérisent précisément la contribution du laser. Le facteur 2 vient du fait que deux pulses sont envoyés dans l’interféromètre pour une expérience de type HOM. Nous remarquerons que cette procédure de correction néglige les corrélations laser/boîte si les photons viennent de deux pulses différents, ainsi que les corrélations laser/laser. Cependant, il est raisonnable de supposer que ces corrélations sont négligeables en raison du faible nombre de photons laser collecté. La Figure 3.4 (c) présente les résultats des ajustements en exponentielles décroissantes<sup>2</sup> pour les mesures de HOM (trait plein) et de HBT (pointillé), qui permettent d’extraire les contributions de chaque pic malgré leur recouvrement. Nous présentons de plus, Figures 3.4 (d), le résultat de l’équation. (3.2.20) nous permettant d’obtenir les valeurs des termes  $B_i$  intervenant dans l’expression de  $M$ . Dans la suite, les valeurs de  $M$  présentées seront toujours corrigées selon cette méthode.

Finalement, la valeur de  $g$  caractérisant l’unicité des photons émis peut être extraite de l’histogramme de coïncidences présenté Figure 3.4 (b) et réalisé dans un montage de type HOM,  $g = (A_1 + A_2 + A_3)/(A_4 + A_5 + A_6)$ . Notons simplement qu’une telle procédure a tendance à

2. Nous justifierons plus loin dans ce chapitre la forme en exponentielle décroissante (de largeur  $1/T_1$ ) des ajustements permettant d’extraire les valeurs de  $A_1$ ,  $A_2$  et  $A_3$ .

surévaluer la valeur du paramètre  $g$  par rapport à une mesure réalisée dans une expérience de type HBT standard.

### 3.2.3.4 Prise en compte des imperfections expérimentales de l'interféromètre de Mach-Zehnder

Nous venons de voir que la présence de laser diffusé a pour conséquence de réduire l'indiscernabilité mesurée dans une expérience de type HOM. Comme mis en évidence dans la partie 3.2.3.2, une autre source de perte de l'indiscernabilité vient du fait que la lame semi-réfléchissante n'est pas parfaitement 50/50. Il est possible de prendre en compte ces imperfections en utilisant le résultat obtenu Eq. (3.2.18),

$$\mathcal{I} = \frac{R^2 + T^2}{2RT} \mathcal{I}_{\text{mes}}, \quad (3.2.21)$$

où  $R$  et  $T$  sont les coefficients de réflexion et de transmission en intensité de chaque lame semi-réfléchissante (supposées identiques) vérifiant  $R + T = 1$ .

Pour obtenir les valeurs expérimentales des coefficients  $R$  et  $T$ , nous utilisons l'histogramme de coïncidences (Figure 3.5 (b)) obtenu pour une mesure de type HBT réalisée dans la configuration expérimentale HOM comme schématisé Figure 3.5 (a). Nous allons montrer que les amplitudes des pics situés aux délais  $\tau_n = n\tau_{rep} \pm 3$  ns où  $n \in \mathbb{N}$  et  $\tau_{rep} = 12$  ns est le taux de répétition de laser, nous permettent de déterminer  $R$  et  $T$ . Dans la suite, nous noterons  $\eta$  la probabilité qu'un photon émis par une BQ soit collecté et détecté à la sortie de l'interféromètre. Nous pouvons écrire les amplitudes  $B_{n,\pm 3}$  des pics de l'histogramme de coïncidence aux délais  $\tau_{n,\pm 3} = n\tau_{rep} \pm 3$  ns en fonction des coefficients  $R$ ,  $T$  et  $\eta$ .

- Expression de  $B_{n,+3}$

Pour avoir une coïncidence à  $\tau_{n,+3} = n\tau_{rep} + 3$  ns, il faut que le photon du premier pulse prenne le chemin court et soit détecté sur l'APD *start* (probabilité  $T^2$ ) et que celui du deuxième pulse prenne le chemin long et soit détecté sur l'APD *stop* (probabilité  $RT$ ), nous avons alors

$$B_{n,+3} = \eta^2 RT^3. \quad (3.2.22)$$

- Expression de  $B_{n,-3}$

Pour avoir une coïncidence à  $\tau_{n,-3} = n\tau_{rep} - 3$  ns, il faut que le photon du premier pulse prenne le chemin long et soit détecté sur l'APD *start* (probabilité  $R^2$ ) et que celui du deuxième pulse prenne le chemin court et soit détecté sur l'APD *stop* (probabilité  $TR$ ), nous avons alors

$$B_{n,-3} = \eta^2 R^3 T. \quad (3.2.23)$$

En posant  $\alpha_n = \sqrt{\frac{B_{n,+3}}{B_{n,-3}}}$  et en utilisant  $R + T = 1$ , nous obtenons

$$R_n = \frac{1}{1 + \alpha_n}, \quad (3.2.24)$$

où  $R_n$  est la mesure du coefficient  $R$  associée aux pics situés autour du délai  $n\tau_{rep}$  de l'histogramme de coïncidences. Les valeurs des coefficients  $B_{n,\pm 3}$  sont obtenues grâce aux ajustements de l'amplitude des pics à  $\pm 3$  ns de part et d'autre de chaque pic à  $n\tau_{rep}$ , comme présenté Figure 3.5 (b)

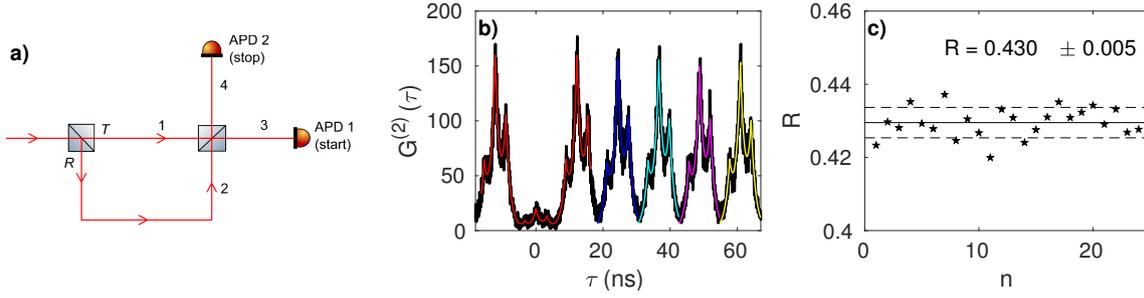


FIGURE 3.5 – (a) Schéma expérimental de l'interféromètre de Mach-Zehnder utilisé pour la mesure de l'indiscernabilité des photons émis par une BQ. (b) Histogramme de coïncidence pour une expérience de type HBT réalisée dans le montage de la Figure (a). L'ajustement en rouge est le même que celui présenté Figure 3.4 (b) et nous présentons les ajustements des quatre premiers des triplets de pics suivants (sur un total de 25). (c) Distribution des valeurs mesurées de  $R$ . Le trait plein correspond à la valeur moyenne de la distribution et les pointillés donne la déviation standard.

pour les 5 premiers triplets de pics sur un total de 25 analysés. Les valeurs des  $R_n$  sont obtenues en utilisant Eq. (3.2.24) et sont présentées Figure 3.5 (c). Le coefficient  $R$  est obtenu en prenant la moyenne des  $R_n$  (trait plein) et l'erreur est donnée par la déviation standard de la distribution (pointillés), nous obtenons ici  $R = 0.430 \pm 0.005$ , et  $T = 0.570 \pm 0.005$ , en accord avec la notice du fabricant.

### 3.2.4 Temps de cohérence et indiscernabilité

A ce stade, nous avons vu deux expériences distinctes en mesure de nous renseigner sur les interactions entre une BQ et sa matrice solide. La première est la mesure du temps de cohérence des photons émis (voir parties 2.3.5 et 3.2.2), où l'écart de  $T_2$  par rapport à la limite radiative  $2T_1$ , nous renseigne sur l'interaction entre la BQ et son environnement. La deuxième est celle de la mesure de l'indiscernabilité des photons émis (voir parties 2.3.6 et 3.2.3), où à nouveau, la perte d'indiscernabilité est due aux processus d'interaction avec l'environnement. Il est donc pertinent de se demander si ces deux expériences rendent compte du même processus physique, ou si au contraire, elles sont complémentaires et permettent d'aller plus loin dans la compréhension des mécanisme de décohérence mis en jeu.

Afin de comparer les mesures de STF et d'interférences à deux photons, il est nécessaire de trouver un lien entre les quantités mesurées, à savoir le temps de cohérence et l'indiscernabilité des photons émis. Ce travail a été réalisé par Bylander *et al* [95], dans le cas de processus de décohérence markoviens pour deux émetteurs indépendants. Un système soumis à des processus markoviens est un système pour lequel l'évolution temporelle à l'instant  $t$  ne dépend que de l'état du système au même instant, et non pas de son état à l'instant précédent. Autrement dit, la prédiction du futur à partir du présent, n'est pas rendue plus précise par la connaissance d'éléments d'information du passé. Ensuite, le fait que les émetteurs soient supposés indépendants signifie que les deux photons se recombinant sur la lame semi-réfléchissante sont indépendants : soit qu'ils ont été émis par deux émetteurs distincts, soit par un unique émetteur mais avec un délai grand devant leur temps

	$T_1$ (ps)	$g$	$\eta$	$\mathcal{I}' = T_2/2T_1$	$\mathcal{I}$
BQ 1	1100	0.12	0.45	0.35	0.79
BQ 2	750	0.11	0.55	0.23	0.83
BQ 3	670	0.07	0.10	0.71	0.83
Erreurs	2 %	$\pm 0.02$	$\pm 0.1$	10 - 15 %	$\pm 0.04$

TABLE 3.2 – Tableau récapitulatif des paramètres expérimentaux mesurés pour trois BQ sous excitation résonante.  $T_1$  est le temps de vie radiatif de l'état excité,  $g$  caractérise l'unicité des photons émis, et  $\eta$  correspond à la contribution inhomogène du profil pseudo-Voigt permettant d'extraire la valeur de  $T_2$  (voir Eq. (3.2.4)). Nous donnons également la valeur du rapport  $T_2/2T_1$  où  $T_2$  a été mesuré par STF, ainsi que celle de l'indiscernabilité obtenue dans une expérience d'interférences à deux photons,  $\mathcal{I}$ . Les erreurs sur  $T_1$ ,  $g$  et  $\mathcal{I}$  sont dues aux ajustements utilisés pour extraire les valeurs mesurées alors que pour  $\eta$  et  $T_2$ , les erreurs sont extraites de simulations numériques.

de cohérence. Avec ces approximations, les auteurs montrent que l'indiscernabilité attendue  $\mathcal{I}'$ , corrigée par les imperfections expérimentales comme décrit précédemment, est relié au temps de cohérence  $T_2$  des photons émis par

$$\mathcal{I}' = \frac{T_2}{2T_1}. \quad (3.2.25)$$

Le tableau 3.2 donne, pour trois BQ différentes, les valeurs du rapport  $T_2/2T_1$ , où  $T_2$  a été mesuré par STF, et de l'indiscernabilité, mesurée dans une expérience d'interférence à deux photons [121]. Nous donnons aussi en complément pour chacune des boîtes, le temps de vie radiatif  $T_1$  mesuré sous excitation résonante par photoluminescence résolue en temps, la contribution inhomogène  $\eta$  du profil pseudo-Voigt (voir partie 3.2.2), et la valeur du paramètre  $g$  obtenue dans une expérience de type HBT. Remarquons que l'intégralité des expériences réalisées sur les BQ 1 et 3 l'ont été en présence d'un laser He-Ne continu de faible puissance<sup>1</sup>, nécessaire pour retrouver ou exalter la luminescence résonante comme expliqué dans la partie 2.2.5. Nous constatons que pour les trois BQ étudiées ici, les valeurs de l'indiscernabilité mesurées dans une expérience d'interférence à deux photons se situent autour de 0.8 ce qui correspond à un très bon degré d'indiscernabilité des photons émis. Au contraire, les rapports  $T_2/2T_1$  prédisent une indiscernabilité faible, à l'exception de la BQ 3 pour laquelle  $T_2/2T_1$  est élevé mais reste inférieur à l'indiscernabilité mesurée. Nous en concluons que les deux types d'expériences présentées ici ne mesurent pas les mêmes processus de décohérence. Cette interprétation est corroborée par des résultats d'expériences similaires réalisées pour trois températures différentes sur la BQ 2 (présentés Figure 3.6 (a)), et où nous observons l'absence totale de recouvrement entre les résultats d'interférences à deux photons (noir) et ceux obtenus par STF (rouge).

Nous pouvons interpréter cette différence, en comparant les temps caractéristiques des deux expériences considérées par rapport aux temps caractéristiques des interactions de la BQ avec son

1. Pour toutes les expériences où il était nécessaire d'ajouter un laser non-résonant de faible puissance pour retrouver la luminescence résonante, nous nous sommes assurés que cette excitation ne créait pas de paires électron-trou dans la BQ.

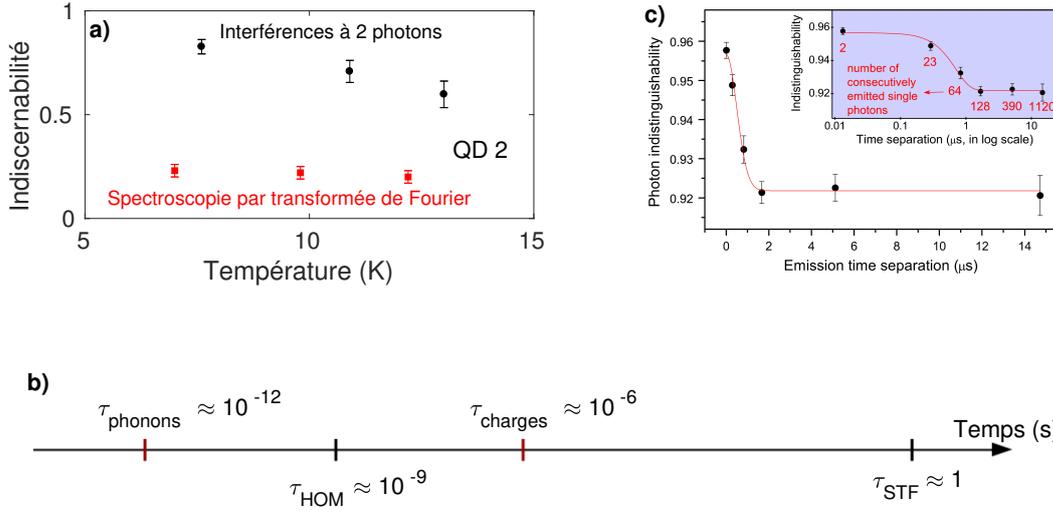


FIGURE 3.6 – (a) Comparaison pour la BQ 2 des mesures d’indiscernabilité en fonction de la température dans une expérience d’interférences à deux photons (noir), et des rapports  $T_2/2T_1$  où  $T_2$  a été mesuré directement par STF (rouge). (b) Frise temporelle faisant apparaître les temps caractéristiques des expériences de STF et d’interférences à deux photons, ainsi que les temps caractéristiques d’interaction entre une BQ et les phonons d’une part, et les charges environnantes d’autre part. (c) Indiscernabilité mesurée par Wang et al [122] dans une expérience d’interférences à deux photons en fonction de délai entre l’émission des deux photons qui interfèrent sur la lame semi-réfléchissante.

environnement. Pour une expérience de STF, le temps caractéristique de la mesure  $\tau_{\text{STF}}$ , est donné par le temps d’acquisition pour chaque position du miroir amovible, puisque c’est le temps pendant lequel nous moyennons l’ensemble des processus de décohérence. Dans notre cas, nous avons vu dans la partie 2.3.5 que  $\tau_{\text{STF}} = 1$  s. Dans le cas d’une expérience d’interférences à deux photons, le temps caractéristique de la mesure  $\tau_{\text{HOM}}$  est donné par le délai séparant l’émission des deux photons qui interfèrent sur la lame semi-réfléchissante, et nous avons  $\tau_{\text{HOM}} = 3$  ns. La Figure 3.6 (b) présente une frise temporelle sur laquelle nous avons fait figurer les temps  $\tau_{\text{HOM}}$  et  $\tau_{\text{STF}}$  ainsi que les temps caractéristiques d’interaction avec les charges environnantes  $\tau_{\text{charges}} \sim 1 \mu\text{s}$  [113] et d’interaction avec les phonons  $\tau_{\text{phonons}} \sim 1$  ps (voir annexe G). Dans le cas d’une mesure de  $T_2$  par STF, les processus de décohérence pris en compte sont dus non seulement à l’interaction avec les charges environnantes, mais aussi à celle avec les phonons, puisque ces interactions ont lieu sur des temps plus courts que celui de la mesure. Au contraire, dans une expérience d’interférences à deux photons comme celles réalisées ici, seuls les processus de décohérence dus à l’interaction avec les phonons sont concernés puisque  $\tau_{\text{HOM}} \ll \tau_{\text{charges}}$ . Nous comprenons donc pourquoi la visibilité des interférences à deux photons, prédite à partir des mesures directes de  $T_1$  et  $T_2$ , ne peut coïncider avec celle mesurée dans une expérience HOM, puisque ces deux expériences ne sondent pas les mêmes processus de déphasage. Delbec *et al* [123] ont récemment mis en évidence un résultat similaire en montrant que le temps de cohérence des photons émis par une BQ décroît avec le temps d’acquisition de la mesure, montrant ainsi que la valeur du temps de cohérence dépend de la manière dont nous le mesurons. De plus, nous présentons Figure 3.6 (c) des mesures d’interférences à deux photons

réalisées en 2016 par Wang *et al* [122] en fonction du délai entre l'émission des deux photons. Les auteurs ont mis en évidence une chute de la visibilité lorsque le délai dépasse la microseconde, échelle de temps caractéristique où le déphasage par les charges entre en jeu, en accord avec notre interprétation.

Étonnamment, de récentes publications [103, 106] affirment que l'interaction avec les charges environnantes joue un rôle majeur dans la perte d'indiscernabilité des photons émis. Cependant, il est essentiel de remarquer que ces expériences ont été réalisées sous excitation quasi-résonante et non strictement à résonance. Il est probable que les fluctuations de charges autour de la BQ, résultent de l'injection de porteurs due à l'excitation par le laser quasi-résonant. Cela se produit sur des temps bien plus courts que la nanoseconde, expliquant ainsi que ces processus aient un effet lors d'expériences de type HOM.

Nous souhaitons conclure cette partie en montrant que la présence d'un laser He-Ne additionnel non-résonant, de faible puissance, ayant pour effet de stabiliser l'environnement électrostatique fluctuant [90, 45, 92], ne modifie pas les résultats obtenus pour l'indiscernabilité des photons émis par la BQ. Nous présentons Figure 3.7 les histogrammes de coïncidences obtenus pour des expériences de type HBT (a) et HOM (b) réalisées sur la BQ 1, sans laser He-Ne. Après correction par la présence de photons laser diffusés et par les imperfections expérimentales (voir partie 3.2.3), nous obtenons une indiscernabilité  $\mathcal{I} = 0.80 \pm 0.05$  équivalente à celle mesurée en présence du laser He-Ne, où nous avons mesuré  $\mathcal{I} = 0.79 \pm 0.03$ .

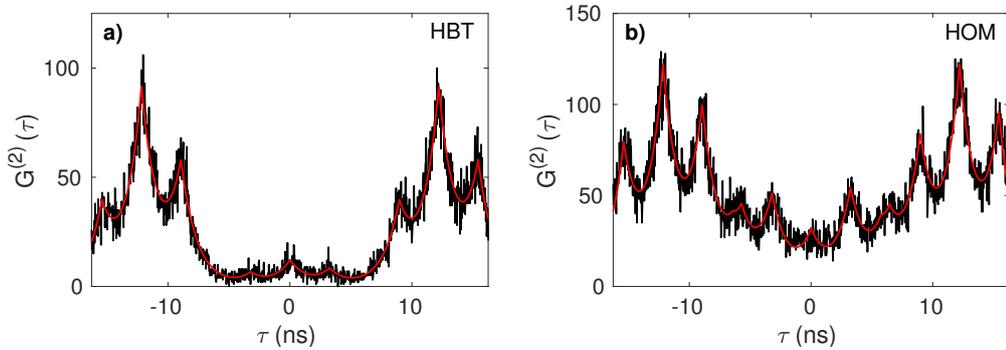


FIGURE 3.7 – Histogrammes de coïncidences obtenus pour des expériences de type HBT (a) et HOM (b) réalisées sur la BQ1 sous excitation résonante et sans laser He-Ne, pour des temps d'acquisition de deux heures et quatre heures et demi respectivement. Les temps d'acquisition sont ici beaucoup plus longs que sur la Figure 3.4, car le signal est beaucoup plus faible.

Ainsi, le principal résultat à retenir, est que la mesure de l'indiscernabilité des photons émis par une BQ excitée à la résonance, dans une expérience d'interférences à deux photons, ne sonde que les processus de décohérence liée à l'interaction des excitations électroniques de la BQ avec les phonons acoustiques du cristal environnant, si les photons qui interfèrent sont émis avec un délai court devant la microseconde.

### 3.2.5 Expériences en température pour l'étude de l'interaction électron-phonon

Les expériences d'indiscernabilité offre donc la possibilité d'étudier expérimentalement le couplage entre un système dont le spectre d'énergie est discret, une BQ, et un réservoir modélisé par une collection d'oscillateurs harmoniques, le bain de phonons. De plus, le contrôle de la température nous permettant de réguler la population de phonons, c'est-à-dire l'intensité du couplage, nous avons réalisé des expériences d'interférences à deux photons sur les BQ 1 et 2 (Table 3.2), sous excitation résonante et en fonction de la température. La Figure 3.8 présente les histogrammes de coïncidence obtenus pour des expériences de type HBT et HOM réalisées sur la BQ 1 pour  $T = 4\text{ K}$  (a et b),  $T = 13\text{ K}$  (c et d) et  $T = 20\text{ K}$  (e et f). Nous constatons sans surprise que, plus la température augmente, plus les photons émis par la BQ sont discernables à cause de l'interaction avec les phonons.

Nous pouvons remarquer que les temps d'acquisitions pour les mesures réalisées à haute température sont particulièrement longs, la raison étant le faible signal de fluorescence résonante. La principale difficulté de ces expériences est donc d'avoir une grande stabilité afin d'être capable d'en-

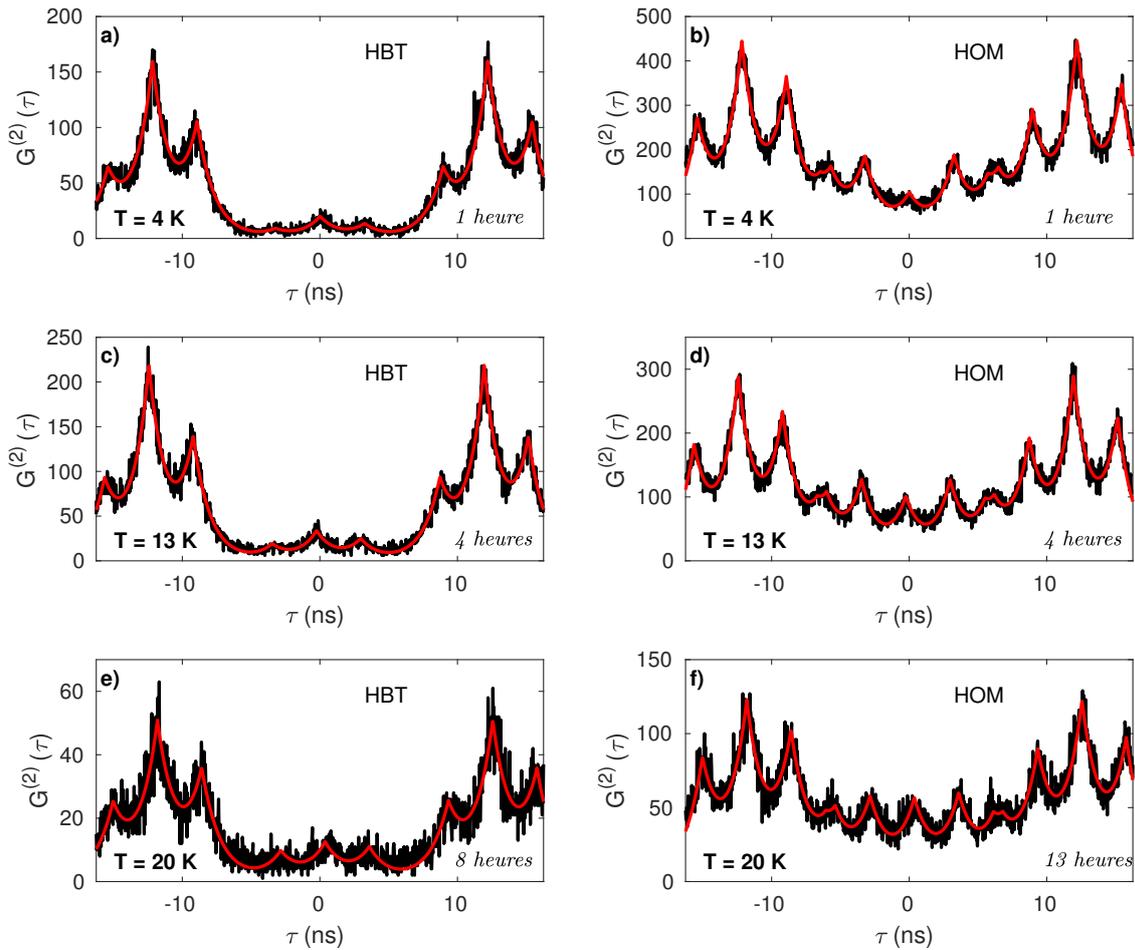


FIGURE 3.8 – Histogrammes de coïncidence obtenus pour des expériences de type HBT et HOM réalisées sur la BQ 1 pour  $T = 4\text{ K}$  (a et b),  $T = 13\text{ K}$  (c et d) et  $T = 20\text{ K}$  (e et f). Nous donnons également les temps d'acquisition pour chaque histogramme.

registrar les histogrammes de coïncidences pour les deux expériences, HBT et HOM, sans retoucher aux différents réglages. En effet, il est primordial que la proportion de laser diffusé et collecté par l'objectif de détection reste constante afin de corriger les données en suivant la procédure décrite dans la partie 3.2.3.3. La clef pour la réalisation de ces mesures a été d'utiliser un cryostat à circuit fermé où les objectifs d'excitation et de détection se trouvent à l'intérieur de la chambre froide, afin de minimiser les vibrations et de solidariser les objectifs et l'échantillon. La Figure 3.9 présente les mesures d'indiscernabilité pour les BQ 1 (noir) et 2 (rouge) sous excitation résonante en fonction de la température. Nous constatons que pour les deux boîtes, la visibilité des interférences à deux photons reste constante jusqu'à une température caractéristique de 12 K, puis chute brutalement pour des températures supérieures. Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous allons décrire le modèle microscopique utilisé pour interpréter quantitativement la perte d'indiscernabilité mise en évidence lors de ces expériences.

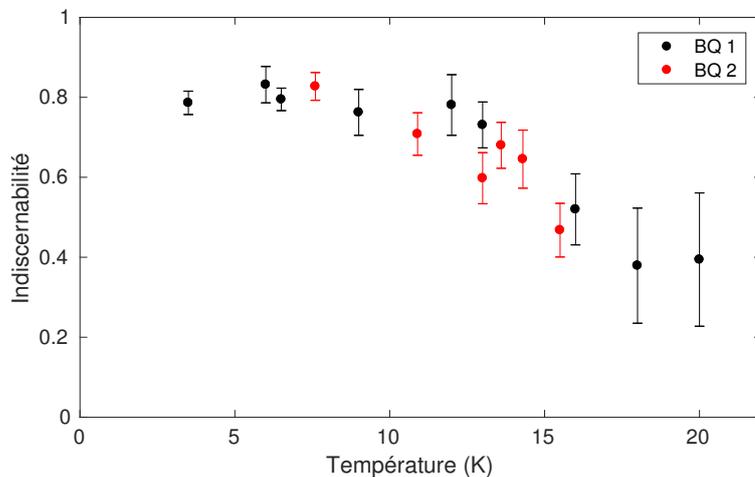


FIGURE 3.9 – Indiscernabilité des photons émis par les BQ 1 et 2 en fonction de la température. Les barres d'erreurs sont dues aux ajustements en exponentielle décroissante utilisés pour obtenir l'intensité intégrée de chaque pic en prenant en compte leur recouvrement (voir partie 3.2.3.3).

### 3.3 Indiscernabilité et interaction électron-phonon

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous allons présenter le modèle microscopique utilisé pour interpréter les mesures d'indiscernabilité en fonction de la température de la Figure 3.9. Nous commencerons par présenter le système considéré, une BQ modélisée par un système à deux niveaux en interaction avec le champ électromagnétique traité quantiquement, et avec le bain de phonons acoustiques, l'interaction étant décrite par un couplage linéaire et quadratique. Nous appliquerons la transformation polaron qui permet de s'affranchir du couplage linéaire, tout en *habillant* les états électroniques de la boîte par les phonons. Cela conduit à l'apparition des PSB comme mis en évidence expérimentalement dans la Figure 3.1 (a). Par la suite, nous utiliserons le formalisme de Lindblad comme dans la partie 1.3.3, afin d'obtenir l'équation maîtresse régissant l'évolution temporelle du système à deux niveaux sous la transformation polaron. Nous en déduirons le spectre d'émission d'une BQ et identifierons deux contributions distinctes, dues aux couplages linéaire

et quadratique avec les phonons. Nous calculerons finalement l'indiscernabilité en fonction de la température, que nous comparerons aux données expérimentales. Nous verrons que si la perte d'indiscernabilité à basse température est contrôlée par des transitions réelles assistées par phonons, la diminution rapide à plus haute température est associée à des transitions virtuelles assistées par phonons, dues à la présence d'états de plus haute énergie dans la BQ.

### 3.3.1 Système considéré et hamiltonien

Dans la partie 1.3.3.1, nous avons considéré le couplage entre une BQ modélisée comme un système à deux niveaux, et le champ électromagnétique traité quantiquement. Le hamiltonien (1.3.39) comporte trois termes, un pour la boîte, un pour le champ électromagnétique, et un pour l'interaction champ-boîte. L'idée est ici de traiter l'impact des vibrations du réseau cristallin, les phonons, sur la cohérence des photons émis par la BQ. En supposant que les ions constituant le réseau cristallin restent proches de leur position d'équilibre (approximation harmonique), le hamiltonien du bain de phonons est de la forme [109]

$$\hat{H}_{\text{ph}} = \sum_{\mathbf{k}} \hbar \nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \hat{b}_{\mathbf{k}}, \quad (3.3.1)$$

où  $\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger}$  et  $\hat{b}_{\mathbf{k}}$  sont les opérateurs création et annihilation d'un phonon dans le mode  $\mathbf{k}$  de pulsation  $\nu_{\mathbf{k}}$ , vérifiant  $[\hat{b}_{\mathbf{k}}, \hat{b}_{\mathbf{k}'}^{\dagger}] = \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$ . Remarquons que les pulsations sont notées  $\nu_{\mathbf{k}}$  quand elles font référence aux phonons, pour ne pas confondre avec celles des photons notées  $\omega_{\mathbf{k}}$ . Comme mentionné précédemment, nous ne considérerons ici que les interactions de basses énergies avec les phonons, ce qui revient à ne prendre en compte que le couplage aux phonons acoustiques, les phonons optiques correspondant à des excitations de haute énergie [109, 110]. De même, nous ne tiendrons pas compte du couplage piézo-électrique dans la suite [124], ni de la polarisation des phonons.

#### 3.3.1.1 Hamiltonien d'interaction électron-phonon

Lorsqu'un électron de la bande de valence est excité vers la bande de conduction, c'est-à-dire lorsqu'une paire électron-trou est créée, la configuration électronique du cristal est changée, ce qui entraîne une modification de la position d'équilibre des ions du réseau cristallin. Ceci conduit à un couplage entre une paire électron-trou et les vibrations du réseau. L'interaction entre un électron à la position  $\mathbf{r}$  et un ion à la position  $\mathbf{R}_m$  ne dépendant que de la distance les séparant, le hamiltonien d'interaction électron-ions s'écrit comme la somme de tous ces termes d'interaction [124],

$$\hat{H}_{\text{e-ions}} = \int d\mathbf{r} \hat{\varrho}(\mathbf{r}) \sum_m V_{\text{e-ion}}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_m), \quad (3.3.2)$$

où  $\hat{\varrho}(\mathbf{r}) = \sum_{j,j'} \psi_j^*(\mathbf{r}) \psi_{j'}(\mathbf{r}) \hat{c}_j^{\dagger} \hat{c}_{j'}$  est l'opérateur densité électronique,  $\hat{c}_j^{\dagger}$  et  $\hat{c}_j$  les opérateurs création et annihilation d'un électron dans l'état  $j$  de fonction d'onde  $\psi_j(\mathbf{r})$ , et où la somme est prise sur tous les états de valence et de conduction. Comme le déplacement des ions autour leur position d'équilibre reste petit, il est possible de faire un développement limité du potentiel  $V_{\text{e-ion}}(\mathbf{r} - \mathbf{R}_m)$  autour de la position d'équilibre des ions dans le réseau cristallin. Le terme d'ordre zéro correspond au potentiel périodique apparaissant dans l'équation (1.2.1) et conduit aux fonctions de Bloch. En

se restreignant au terme du premier ordre et en utilisant la quantification du bain de phonons, le hamiltonien d'interaction électron-phonon devient [109, 124]

$$\hat{H}_{e-ph} = \sum_{\mathbf{k}} M_{\mathbf{k}} \hat{\rho}(\mathbf{k}) (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}), \quad (3.3.3)$$

où  $\hat{\rho}(\mathbf{k}) = \int d\mathbf{r} \hat{\rho}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$  est la transformée de Fourier de l'opérateur densité de charge électronique et  $M_{\mathbf{k}} = v(\mathbf{k}) \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}}$  caractérise le couplage électron-phonon. Dans l'expression précédente de  $M_{\mathbf{k}}$ ,  $v(\mathbf{k})$  est la transformée de Fourier du potentiel d'interaction électron-ion et caractérise la déformation du réseau cristallin,  $c_s = 5110 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  est la vitesse du son dans GaAs où nous avons supposé une relation de dispersion linéaire  $\nu_{\mathbf{k}} = c_s |\mathbf{k}|$ ,  $\rho = 5370 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$  est la masse volumique de GaAs, et  $L^3$  est le volume de quantification des phonons c'est-à-dire le volume de l'échantillon<sup>1</sup>.

En supposant que le potentiel de déformation ne dépend pas de  $\mathbf{k}$ , c'est-à-dire en simplifiant l'interaction électron-ion à une interaction de contact, il est possible de remplacer  $v(\mathbf{k})$  par des constantes  $D_c = -14.6 \text{ eV}$  et  $D_v = -4.8 \text{ eV}$ , déterminées expérimentalement, qui correspondent aux potentiels de déformation pour les bandes de conduction et de valence [124, 108, 109], comme nous le ferons dans la suite.

### 3.3.1.2 Hamiltonien effectif d'interaction électron-phonon

Le hamiltonien (3.3.3) obtenu précédemment décrit l'interaction des phonons avec l'ensemble des états électroniques de la BQ, via l'opérateur densité électronique  $\hat{\rho}(\mathbf{r})$ . Cela signifie que les phonons peuvent, en théorie, coupler un état  $i$  avec un état  $j$  quelconque de la boîte, ce qui rend le problème particulièrement compliqué. L'idée de cette partie est d'obtenir un hamiltonien *effectif* agissant uniquement sur les deux états d'intérêt de la BQ ( $|0\rangle$  et  $|X\rangle$ ), mais prenant quand même en compte le fait que d'autres états électroniques existent, et sont couplés aux phonons. La procédure à suivre est décrite en détail dans le complément  $B_I$  de la référence [73]. Nous utiliserons ici l'expression du hamiltonien effectif à l'ordre 2 qui y est obtenue.

Nous écrivons le hamiltonien total du système sous la forme  $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_{e-ph}$  et traitons l'interaction électron-phonon en perturbation, ce qui est valable si l'énergie caractéristique du couplage électron-phonon est faible par rapport à l'énergie des transitions de la boîte [125]. C'est le cas pour les BQ étudiées durant cette thèse : l'écart énergétique entre les états  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  est  $\hbar\omega_X \approx 1.3 \text{ eV}$ , ce qui est très grand devant l'énergie caractéristique des phonons acoustiques (de l'ordre du meV). Le terme  $\hat{H}_0$  tient compte du hamiltonien de la boîte, du champ électromagnétique, de son interaction avec la boîte, ainsi que du hamiltonien du bain de phonon  $\hat{H}_{ph}$  défini Eq. (3.3.1). Nous avons vu dans la partie 1.3.3 que dans le formalisme de Lindblad, le couplage entre une BQ et le champ électromagnétique ne modifie pas les états propres de la boîtes. Les états propres de  $\hat{H}_0$  pour la partie BQ restent donc  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$ . En notant ces états avec un indice  $A$ , et avec un indice  $B$  ceux de plus haute énergie de la BQ comme schématisé Figure 3.10, les hamiltoniens effectifs

1. Nous pouvons remarquer que dans ce manuscrit la notation  $L^3$  a été utilisée pour faire référence à différents volumes de quantification (phonons, champ électromagnétique, fonctions de Bloch). Nous nous permettons d'utiliser ces notations pouvant prêter à confusion car jamais elle n'interviennent simultanément dans les problèmes considérés.

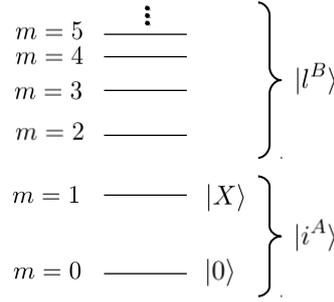


FIGURE 3.10 – Séparation des états propres d'une BQ en deux catégories. Les états d'intérêts sont  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  et sont notés avec l'indice A. Les états de plus haute énergie dans la boîte, auxquels nous ne nous intéressons pas sauf pour prendre en compte leur contribution pour le couplage quadratique aux phonons, sont notés avec un indice B.

pour l'interaction électron-phonon au premier et deuxième ordre sont donnés par,

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} = \sum_{i^A, j^A} |i^A\rangle \langle i^A| \hat{H}_{\text{e-ph}} |j^A\rangle \langle j^A|, \quad (3.3.4a)$$

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(2)} = \frac{1}{2} \sum_{i^A, j^A} \sum_{l^B} |i^A\rangle \frac{\langle i^A| \hat{H}_{\text{e-ph}} |l^B\rangle \langle l^B| \hat{H}_{\text{e-ph}} |j^A\rangle}{E_{j^A} - E_{l^B}} \langle j^A| + \text{h.c.} \quad (3.3.4b)$$

### Couplage linéaire

L'énergie caractéristique des phonons acoustiques étant très petite devant l'énergie de la transition de la BQ, nous pouvons supposer qu'il n'y a pas de transition électronique induite par les phonons, et donc que  $\langle X| \hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} |0\rangle = 0$ . Le couplage au premier ordre devient donc

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} = |0\rangle \langle 0| \sum_{\mathbf{k}} M_{00}^{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}) + |X\rangle \langle X| \sum_{\mathbf{k}} M_{XX}^{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}), \quad (3.3.5)$$

où nous avons défini  $M_{ij}^{\mathbf{k}} = \langle i| M_{\mathbf{k}} \hat{\rho}(\mathbf{k}) |j\rangle$ . En utilisant le fait que  $|0\rangle \langle 0| + |X\rangle \langle X| = \mathbb{1}$ , nous obtenons

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} = \sum_{\mathbf{k}} M_{00}^{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}) + |X\rangle \langle X| \sum_{\mathbf{k}} (M_{XX}^{\mathbf{k}} - M_{00}^{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}). \quad (3.3.6)$$

Le premier terme de l'équation précédente n'agit pas sur l'état électronique de la BQ et peut être retiré grâce à une transformation unitaire qui renormalise<sup>1</sup> l'énergie de la transition de la boîte [126]. Nous obtenons alors

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} = |X\rangle \langle X| \sum_{\mathbf{k}} g_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} + \hat{b}_{-\mathbf{k}}), \quad (3.3.7)$$

où nous avons noté  $g_{\mathbf{k}} = M_{XX}^{\mathbf{k}} - M_{00}^{\mathbf{k}}$ . Nous retrouvons le modèle des bosons indépendants (*independent boson model* en anglais), généralement utilisé pour décrire l'interaction entre un système à deux niveaux et un bain de phonons [127]. Ce terme du premier ordre, correspond à l'absorption ou à l'émission d'un phonon comme schématisé Figure 3.11 (a). Il a pour conséquence l'apparition des PSB dans le spectre de luminescence comme nous le verrons dans la partie 3.3.4.

1. Nous verrons que la transformation polaron, utilisée dans la partie 3.3.2, a un effet similaire.

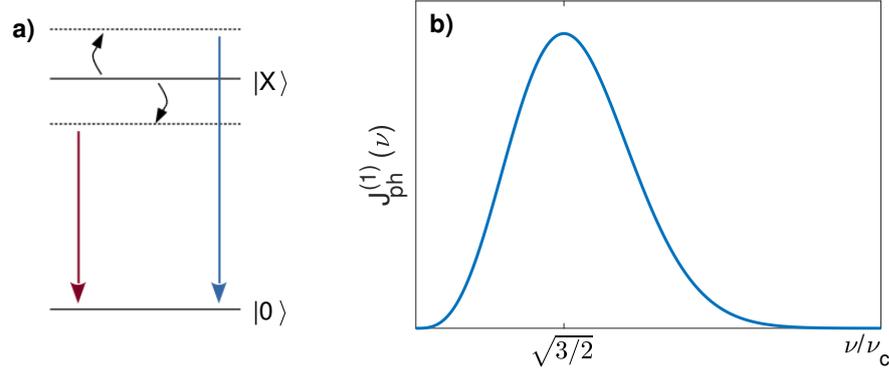


FIGURE 3.11 – (a) Processus d’interaction ”réels” avec les phonons : un phonon peut être absorbé ou émis par la BQ. Le photon émis par la boîte après cette interaction aura donc une énergie plus grande ou plus petite que si la boîte n’interagissait pas avec les phonon. Une conséquence est l’apparition des PSB dans le spectre de photoluminescence. (b) Densité spectrale de couplage aux phonons pour le terme d’interaction du premier ordre (en unités réduites).

Le calcul de la densité spectrale de couplage linéaire aux phonons [77],  $J_{ph}^{(1)}(\nu) = \sum_{\mathbf{k}} |g_{\mathbf{k}}|^2 \delta(\nu - \nu_{\mathbf{k}})$ , qui comme dans le cas du couplage au champ électromagnétique, caractérise le couplage entre la BQ et les phonons, est réalisé dans l’annexe G.1.1. En supposant un potentiel de confinement parabolique à symétrie sphérique pour la BQ (qui définit la forme des fonctions d’onde), nous obtenons

$$g_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \left( D_c e^{-\left(\frac{d_c \nu_{\mathbf{k}}}{2c_s}\right)^2} - D_v e^{-\left(\frac{d_v \nu_{\mathbf{k}}}{2c_s}\right)^2} \right), \quad (3.3.8)$$

où  $d_{v,c}$  caractérise la taille du confinement pour les bandes de valence et de conduction. En considérant que le confinement est le même dans les bandes de valence et de conduction,  $d_c = d_v = d$ , nous montrons que

$$J_{ph}^{(1)}(\nu) = \alpha \nu^3 e^{-\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2}, \quad (3.3.9)$$

avec  $\alpha = \hbar(D_c - D_v)^2 / 4\pi^2 \rho c_s^5$  ( $\alpha/\hbar^2$  est en  $s^2$ ) et  $\nu_c = \sqrt{2}c_s/d$  la fréquence de coupure caractérisant la gamme de phonons interagissant avec la BQ. La Figure 3.11 (b) donne l’allure de  $J_{ph}^{(1)}(\nu)$  et nous constatons que seul les phonons dont l’énergie est proche de  $\hbar\nu_c$  participent au couplage avec la BQ. Physiquement, la taille du confinement étant de l’ordre de la taille de la BQ, cela revient à dire que la boîte n’interagit qu’avec les phonons dont la longueur d’onde est de l’ordre de la taille de la boîte.

### Couplage quadratique

En suivant un raisonnement similaire à celui utilisé pour le couplage aux phonons du premier ordre, nous montrons que le couplage quadratique s’écrit [125]

$$\hat{H}_{e-ph}^{(2)} = |X\rangle\langle X| \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{-\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{-\mathbf{k}'}) \quad (3.3.10)$$

avec

$$f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = \sum_{m>1} \left( \frac{M_{Xm}^{\mathbf{k}} M_{mX}^{\mathbf{k}'}}{E_X - E_m} - \frac{M_{0m}^{\mathbf{k}} M_{m0}^{\mathbf{k}'}}{E_0 - E_m} \right), \quad (3.3.11)$$

où la somme sur  $m > 1$ , correspond à sommer sur tous les états électroniques de la BQ autres que  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  (voir Figure 3.10). Nous constatons que le couplage du deuxième ordre correspond à des transitions virtuelles comme schématisé Figure 3.12, assistées par phonons, et dues à la présence d'états de plus haute énergie dans la boîte. Afin de simplifier le problème, nous ne conserverons dans l'expression de  $f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$  ci-dessus que le terme dominant correspondant au cas  $m = 2$ , puisque c'est pour ce terme que le dénominateur d'énergie est le plus petit.

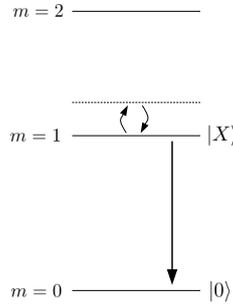


FIGURE 3.12 – Processus de transitions virtuelles assistées par phonons et dus à la présence d'états de haute énergie dans la BQ. Ces processus introduisent un déphasage pur sans changer l'énergie des photons émis.

Le calcul de la densité spectrale pour le couplage aux phonons du deuxième ordre  $J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2) = \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} |f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}|^2 \delta(\nu_1 - \nu_{\mathbf{k}}) \delta(\nu_2 - \nu_{\mathbf{k}'})$  est réalisé dans l'annexe G.2.1. En supposant encore une fois que le confinement est le même pour tous les états électroniques considérés, nous obtenons

$$J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2) = \frac{\alpha^2 \mu}{4\pi \hbar^2 \nu_c^4} \nu_1^3 e^{-\left(\frac{\nu_1}{\nu_c}\right)^2} \nu_2^3 e^{-\left(\frac{\nu_2}{\nu_c}\right)^2} \left( \sum_{m=x,y,z} \nu_1^m \nu_2^m \right)^2, \quad (3.3.12)$$

où  $\alpha$  et  $\nu_c$  ont été définis précédemment, et où le paramètre  $\mu = 4\pi \hbar^2 \left( \frac{D_v^2}{\Delta_0} - \frac{D_c^2}{\Delta_X} \right)^2 / (D_c - D_v)^4$  (en  $s^2$ ) ne dépend que des caractéristiques du matériau.

### 3.3.1.3 Retour au problème considéré

Nous avons vu Eq. (3.2.19) que l'indiscernabilité des photons émis par une BQ ne dépend que de la fonction de corrélation du champ émis par la boîte. La question est à présent de calculer cette fonction de corrélation. Pour cela, nous utilisons le hamiltonien du système représenté Figure 3.13

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{QD}} + \hat{H}_{\text{EM}} + \hat{H}_{\text{ph}} + \hat{H}_{\text{e-EM}} + \hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} + \hat{H}_{\text{e-ph}}^{(2)}, \quad (3.3.13)$$

avec les hamiltoniens de la BQ, du champ de photons libres et de phonons libres donnés par

$$\hat{H}_{\text{QD}} = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z, \quad (3.3.14a)$$

$$\hat{H}_{\text{EM}} = \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda}, \quad (3.3.14b)$$

$$\hat{H}_{\text{ph}} = \sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}. \quad (3.3.14c)$$

Les hamiltoniens d'interaction avec le champ électromagnétique et avec le bain de phonons, au premier et deuxième ordre sont quand à eux donnés par

$$\hat{H}_{\text{e-EM}} = \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}), \quad (3.3.15a)$$

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)} = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} g_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}), \quad (3.3.15b)$$

$$\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(2)} = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'}). \quad (3.3.15c)$$

Les densités spectrales de couplages associées à ces différentes interaction sont données Eq. (1.3.45) pour  $J_{EM}(\omega)$ , Eq. (3.3.9) pour  $J_{ph}^{(1)}(\nu)$  et Eq. (3.3.12) pour  $J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2)$ . De plus, dans les expressions de  $\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(1)}$  et  $\hat{H}_{\text{e-ph}}^{(2)}$ , nous avons utilisé la notation<sup>1</sup>  $|X\rangle\langle X| = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma}$ , ainsi que le fait que  $g_{-\mathbf{k}} = g_{\mathbf{k}}$  et  $f_{\varepsilon_1 \mathbf{k}, \varepsilon_2 \mathbf{k}'} = f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$  avec  $\varepsilon_{1,2} = \pm 1$ , pour remplacer l'opérateur  $\hat{b}_{-\mathbf{k}}$  par  $\hat{b}_{\mathbf{k}}$ .

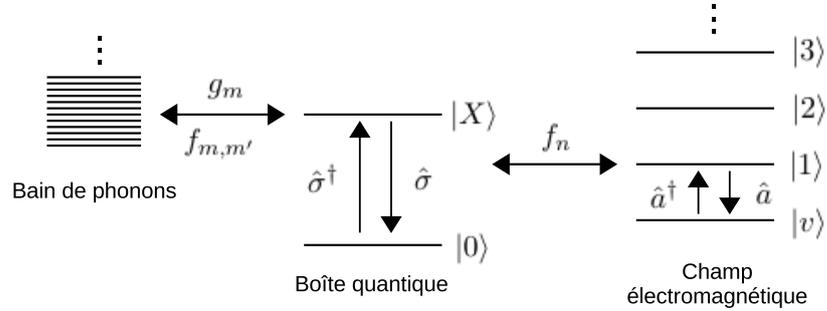


FIGURE 3.13 – Vue schématique du système considéré : une BQ en interaction avec le champ électromagnétique traité quantiquement, ainsi qu'avec un bain de phonon. Pour l'interaction avec les phonons, nous considérons des couplages linéaire  $g_m$  et quadratique  $f_{m,m'}$  (voir partie 3.3.1.2).

La forme du hamiltonien du système nous permet d'utiliser ici aussi la forme obtenue dans l'annexe D du champ émis par la BQ puisque la prise en compte de l'interaction avec les phonons ne change pas la forme de l'équation de Heisenberg (D.0.4), régissant l'évolution temporelle des opérateurs création et destruction de photons. Le champ émis est donc de la forme (1.3.63) et s'écrit  $\hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(-)}(t) = \left(\hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(+)}(t)\right)^\dagger = K \hat{\sigma}^\dagger(t) \mathbf{e}$  où  $K$  est une constante,  $\mathbf{e}$  le vecteur unitaire caractérisant la polarisation de l'émission de la BQ, et  $\hat{\sigma}^\dagger(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H} t} \hat{\sigma}^\dagger e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H} t}$  l'opérateur création d'une excitation

1. Nous avons vu dans le chapitre 1 que  $\hat{\sigma}^\dagger|0\rangle = |X\rangle$ .

dans la boîte en représentation Heisenberg. Pour calculer l'indiscernabilité donnée Eq. (3.2.19), nous devons donc connaître l'évolution temporelle des opérateurs création et annihilation d'une paire électron-trou dans la boîte,  $\hat{\sigma}^\dagger(t)$  et  $\hat{\sigma}(t)$ . Dans la suite de ce chapitre, nous allons résoudre ce problème en utilisant le formalisme de la matrice densité dont l'évolution temporelle sera obtenue en résolvant l'équation maîtresse. Cependant, avant d'obtenir cette équation en utilisant le formalisme de Lindblad comme dans la partie 1.3.3, nous allons faire un changement de base en utilisant la transformation dite *polaron*, qui permet de retirer le terme de couplage linéaire aux phonons.

### 3.3.2 Transformation polaron

La transformation polaron [128, 129, 130, 126] est une transformation couramment utilisée qui consiste à réaliser un changement de base. Il se fait grâce à la transformation unitaire

$$\hat{O}_P = e^{\hat{S}} \hat{O} e^{-\hat{S}} \quad \text{avec} \quad \hat{S} = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \hat{b}_{\mathbf{k}}), \quad (3.3.16)$$

où  $\hat{O}_P$  est l'expression de l'opérateur  $\hat{O}$  sous la transformation polaron et où  $\alpha_{\mathbf{k}} \in \mathbb{R}$  est un paramètre que nous allons déterminer. Nous notons  $\hat{C} = \sum_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \hat{b}_{\mathbf{k}})$  de telle sorte que  $\hat{S} = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \hat{C}$  où  $\hat{C}$  n'agit que sur la partie phonon. L'idée est ici d'appliquer cette transformation à  $\hat{H}$  puis de choisir le paramètre  $\alpha_{\mathbf{k}}$  de manière à supprimer le couplage linéaire aux phonons. Le calcul d'un opérateur sous la transformation polaron (3.3.16) se fait grâce au théorème de Baker-Campbell-Hausdorff présenté dans l'annexe B.3.2 équation (B.3.7). Nous donnons dans l'annexe H le détail de la procédure utilisée pour obtenir l'expression de  $\hat{H}_P$ , le hamiltonien sous la transformation polaron, qui s'écrit en choisissant  $\alpha_{\mathbf{k}} = g_{\mathbf{k}}/\hbar\nu_{\mathbf{k}}$ ,

$$\begin{aligned} \hat{H}_P = & -\frac{\hbar\tilde{\omega}_X}{2} \hat{\sigma}_z + \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda} + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \\ & + \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}_P^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}_P) + \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'}) . \end{aligned} \quad (3.3.17)$$

Nous constatons que la transformation polaron permet bien de s'affranchir du terme de couplage linéaire aux phonons. En contrepartie, les opérateurs création et destruction d'une paire électron-trou dans la BQ sont "habillés" par les phonons,

$$\hat{\sigma}_P = \hat{\sigma} \hat{B}_-, \quad (3.3.18a)$$

$$\hat{\sigma}_P^\dagger = \hat{\sigma}^\dagger \hat{B}_+, \quad (3.3.18b)$$

avec  $\hat{B}_\pm = e^{\pm\hat{C}}$  l'opérateur de déplacement phononique où  $\hat{C} = \sum_{\mathbf{k}} \frac{g_{\mathbf{k}}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \hat{b}_{\mathbf{k}})$ . Notons que la fréquence propre de la BQ a été renormalisée mais que cela est sans conséquence pour la suite. Nous continuerons donc de la noter  $\omega_X$  pour simplifier.

Nous verrons dans la partie 3.3.4, que le couplage linéaire aux phonons, traité grâce à la transformation polaron, est responsable de l'apparition d'un épaulement de part et d'autre de la ZPL, les PSB.

### 3.3.3 Évolution temporelle

Afin de connaître l'évolution temporelle du système, nous allons commencer par obtenir l'équation maîtresse en utilisant le formalisme de Lindblad comme nous l'avons fait dans la partie 1.3.3 dans le cas de l'interaction entre une BQ et le champ électromagnétique. Malgré le fait que, sous la transformation polaron, le terme d'interaction entre la BQ et le champ électromagnétique  $\hat{H}_{e-EM}^P$  fasse intervenir les opérateurs  $\hat{B}_\pm$  correspondant au couplage linéaire de la boîte avec les phonons, Nazir et McCutcheon [124] (section 6.2) ont mis en évidence que les processus d'interaction au champ électromagnétique et aux phonons, peuvent être traités de manière indépendante. Physiquement, l'interaction de la boîte avec les phonons se faisant sur des temps de l'ordre de la picoseconde, ce processus est effectivement indépendant de la relaxation de la boîte qui est due à l'interaction avec le champ électromagnétique, et qui se fait sur des temps beaucoup plus longs de l'ordre de la nanoseconde.

Dans un deuxième temps, nous résolverons l'équation maîtresse afin d'être en mesure de calculer les fonctions de corrélations apparaissant dans l'expression de l'indiscernabilité Eq. (3.2.19).

#### 3.3.3.1 Dérivation de l'équation maîtresse

Nous avons déjà montré dans la partie 1.3.3.2 que l'utilisation du formalisme de Lindblad (présenté dans l'annexe B) est valide dans le cas de l'interaction d'une BQ avec le champ électromagnétique. Nous montrons ci-dessous que c'est aussi le cas pour l'interaction quadratique avec les phonons. Cette fois, le "petit" système est toujours la BQ mais le réservoir est le bain de phonons. Nous commençons par constater que le hamiltonien d'interaction considéré a bien la forme voulue : une partie agissant sur la BQ et une autre sur les phonons. Nous supposons que la boîte ne perturbe que de manière négligeable le bain de phonons, ce qui est raisonnable puisque sa taille est très petite devant la taille de l'échantillon et que sa structure cristalline est essentiellement la même que celle du reste de l'échantillon. Nous pouvons alors utiliser l'approximation de Born qui nous permet d'écrire la matrice densité du système BQ plus phonons comme le produit d'une partie agissant sur la boîte et d'une autre agissant sur les phonons, ainsi que de supposer que le bain de phonons est dans un état stationnaire. Les temps caractéristiques du système sont :

- le temps de relaxation de la boîte, correspondant à son temps de vie radiatif qui est de l'ordre de la nanoseconde, donc ici  $\tau_r = T_1 \sim 10^{-9}$  s
- le temps caractéristique lié à la fréquence de la transition de la boîte étudiée est  $\tau_s \sim 2\pi/\omega_X \sim 10^{-15}$  s puisque  $E_X \sim 1.3$  eV
- le temps de corrélation du réservoir  $\tau_B$  qui est de l'ordre de la picoseconde pour le bain de phonons comme nous le montrons dans l'annexe G.2.

Nous constatons donc que  $\tau_B \ll \tau_r$  et  $\tau_s \ll \tau_r$  ce qui justifie les approximations Markovienne et séculaire. Enfin, en supposant que la boîte est à l'instant initial dans son état excité, la condition au temps initial Eq. (B.3.10) est bien validée comme nous le vérifions dans l'annexe I.

L'équation maîtresse en représentation interaction est alors de la forme

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = \Gamma \mathcal{L}_\sigma[\hat{\rho}_s] + D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s], \quad (3.3.19)$$

où  $\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \hat{O}\hat{\rho}_s\hat{O}^\dagger - \frac{1}{2}\{\hat{O}^\dagger\hat{O}, \hat{\rho}_s\}$  et où  $\Gamma$  est le taux de recombinaison radiatif. Le calcul de  $D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s]$  est présenté dans l'annexe I et l'équation maîtresse devient alors en représentation Schrödinger,

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_{QD}, \hat{\rho}] + \Gamma\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + 2\gamma_{pd}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s], \quad (3.3.20)$$

où  $\hat{H}_{QD} = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z$ . Le coefficient  $\gamma_{pd}$  est appelé coefficient de déphasage pur (*pure dephasing* en anglais), et nous verrons par la suite qu'il est responsable d'un élargissement homogène de la raie de luminescence, contrairement au couplage linéaire aux phonons qui change la forme de la raie avec l'apparition des PSB. Ce coefficient est donné par

$$\gamma_{pd} = \frac{\alpha^2\mu}{\hbar^4\nu_c^4} \int_0^{+\infty} d\nu \nu^{10} e^{-2\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} n(\nu)(n(\nu) + 1), \quad (3.3.21)$$

où  $n(\nu)$  est la distribution de Bose-Einstein qui donne le nombre de phonons d'énergie  $\hbar\nu$  à la température  $T$ ,

$$n(\nu) = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\nu}{k_B T}} - 1}. \quad (3.3.22)$$

### 3.3.3.2 Résolution de l'équation maîtresse

Nous résolvons l'équation maîtresse (3.3.20) comme dans la partie 1.3.3.5 où nous avons vu Eq. (1.3.59) que

$$[\hat{\sigma}_z, \hat{\rho}_s] = \begin{pmatrix} 0 & 2\rho_{12} \\ -2\rho_{21} & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.3.23a)$$

$$\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \begin{pmatrix} \rho_{22} & -\rho_{12}/2 \\ -\rho_{21}/2 & -\rho_{22} \end{pmatrix}. \quad (3.3.23b)$$

De plus, l'opérateur de Lindblad pour le couplage quadratique aux phonons s'écrit

$$\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \begin{pmatrix} 0 & -\rho_{12}/2 \\ -\rho_{21}/2 & 0 \end{pmatrix}, \quad (3.3.24)$$

ce qui nous permet d'obtenir le système d'équations couplées régissant l'évolution temporelle du système à deux niveaux,

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} + \Gamma\rho_{11} = \Gamma, \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd} - i\omega_X\right)\rho_{12} = 0, \\ \frac{d\rho_{21}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd} + i\omega_X\right)\rho_{21} = 0, \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} + \Gamma\rho_{22} = 0. \end{cases} \quad (3.3.25)$$

En considérant qu'à l'instant initial le système se trouve dans l'état excité, c'est-à-dire  $\rho_{22}(0) = 1$ , nous avons

$$\rho_{22}(t) = 1 - \rho_{11}(t) = e^{-\Gamma t}, \quad (3.3.26)$$

$$\rho_{12}(t) = \rho_{21}^*(t) = e^{i\omega_X t} e^{-\left(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd}\right)t}, \quad (3.3.27)$$

ce qui permet de connaître à tout instant l'état du système. Nous constatons que le couplage quadratique aux phonons ne modifie pas les termes de population de la matrice densité mais intervient en revanche dans les termes de cohérence, ce qui vaut à  $\gamma_{\text{pd}}$  le nom de déphasage pur.

### 3.3.4 Spectre de luminescence et ailes phonons

Nous sommes à présent en mesure de calculer la forme du spectre de luminescence émise par une BQ, en prenant en compte le couplage linéaire et quadratique aux phonons. Pour cela, nous suivons une procédure similaire à celle utilisée dans la partie 1.3.3.6 où nous avons montré que pour une BQ interagissant uniquement avec le champ électromagnétique, le profil d'émission est lorentzien avec une largeur de raie contrôlée par le temps de vie radiatif. Nous verrons dans la partie suivante, que la perte d'indiscernabilité mesurée, est due aux déviations par rapport au cas où la boîte est uniquement couplée au champ électromagnétique.

#### 3.3.4.1 Utilisation du théorème de Wiener-Khinchin

Nous utilisons le théorème de Wiener-Khinchin optique [81, 82], présenté dans l'annexe E, qui permet de relier le champ électrique émis par un dipôle, à la densité spectrale d'énergie rayonnée  $S(\omega)$ , c'est-à-dire au spectre détecté par des appareils de mesure. Le théorème donne (dans sa version alternative, voir annexe E.4),

$$S(\omega) = \mathcal{S}(\omega) + \mathcal{S}^*(\omega) \quad \text{avec} \quad \mathcal{S}(\omega) = \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} dt \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle e^{-i\omega\tau}. \quad (3.3.28)$$

Nous avons vu dans la partie 3.3.2 que sous la transformation polaron, les opérateurs création et destruction d'une paire électron-trou dans la boîte sont habillés par les opérateurs phononiques  $\hat{B}_{\pm}$  (voir Eq. (3.3.18)). Le champ émis par la BQ est donc de la forme

$$\hat{E}^{(-)}(t) = K \hat{\sigma}^{\dagger}(t) = K \hat{\sigma}_P^{\dagger}(t) \hat{B}_-(t). \quad (3.3.29)$$

En tenant compte du fait que les temps caractéristiques des processus d'interaction avec les phonons (picoseconde) et d'émission de photons (nanoseconde) sont très différents, nous en concluons que la valeur moyenne du champ électrique apparaissant Eq. (3.3.28) peut être séparée en deux contributions,

$$\begin{aligned} \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle &= |K|^2 \langle \hat{\sigma}_P^{\dagger}(t+\tau) \hat{\sigma}_P(t) \rangle \langle \hat{B}_-(t+\tau) \hat{B}_+(t) \rangle \\ &= |K|^2 g_P^{(1)}(t+\tau, t) \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t+\tau, t), \end{aligned} \quad (3.3.30)$$

où  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  est la fonction de corrélation de la boîte sous la transformation polaron, et  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t+\tau, t)$  celle du bain de phonon pour le couplage linéaire.

L'expression de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  s'obtient en résolvant l'équation maîtresse sous la transformation polaron (voir partie 3.3.3) et en utilisant le théorème de la régression quantique présenté dans l'annexe F. En remarquant que la prise en compte de l'interaction quadratique avec les phonons a pour unique conséquence de transformer le terme  $\Gamma/2$  dans le système d'équations (1.3.60) en

$\Gamma/2 + \gamma_{pd}$  dans le système (3.3.25), nous obtenons l'expression de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  à partir de celle de  $g^{(1)}(t+\tau, t)$  Eq. (1.3.66), de telle sorte que

$$g_P^{(1)}(t+\tau, t) = e^{i\omega_X \tau} e^{-\Gamma t} e^{-(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd})\tau}. \quad (3.3.31)$$

Nous montrons de plus dans l'annexe G.1 que sous l'approximation de Born (annexe B.1) la fonction de corrélation du bain de phonon pour le couplage quadratique ne dépend que de  $\tau$ , et que

$$\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = B^2 e^{\varphi(\tau)} \quad \text{avec} \quad B = e^{-\varphi(0)/2}, \quad (3.3.32)$$

où  $\varphi(\tau)$  est donné par

$$\varphi(\tau) = \frac{\alpha}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} d\nu \nu e^{-\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} \left[ \cos(\nu\tau) \coth\left(\frac{\beta\hbar\nu}{2}\right) - i \sin(\nu\tau) \right]. \quad (3.3.33)$$

Nous traçons Figure 3.14 la fonction de corrélation  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$  à  $T = 4$  K (noir),  $T = 15$  K (bleu) et  $T = 40$  K (rouge). Nous constatons que le temps de décroissance de cette fonction, qui correspond au temps de relaxation d'une excitation dans le bain de phonons, est bien de l'ordre de la picoseconde comme annoncé précédemment. De plus, nous remarquons que plus la température est grande, plus la fonction de corrélation décroît rapidement jusqu'à une valeur faible, ce qui est cohérent avec le fait que la population de phonons augmente avec la température.

Finalement, en utilisant les équations (3.3.28), (3.3.30) et (3.3.32),  $\mathcal{S}(\omega)$  se met sous la forme

$$\mathcal{S}(\omega) = |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} dt g_P^{(1)}(t+\tau, t) e^{\varphi(\tau)} e^{-i\omega\tau}. \quad (3.3.34)$$

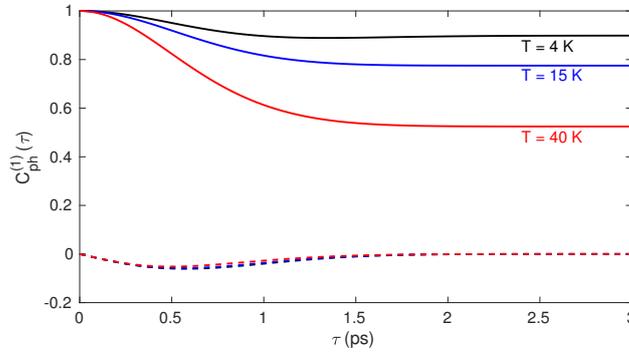


FIGURE 3.14 – Parties réelles (trait plein) et imaginaires (pointillés) de la fonction de corrélation du bain de phonons pour le couplage linéaire à  $T = 4$  K (noir),  $T = 15$  K (bleu) et  $T = 40$  K (rouge). Pour le calcul nous avons utilisé  $\hbar\nu_c = 1.45$  meV et  $\alpha\nu_c^2/\hbar^2 = 0.17$ .

### 3.3.4.2 Raie zéro-phonon et ailes phonons

Nous montrons maintenant que le spectre de luminescence peut s'écrire comme la somme de deux contributions, une pour la ZPL, et une pour les PSB. Pour ce faire, nous écrivons  $e^{\varphi(\tau)} = 1 + e^{\varphi(\tau)} - 1$  dans l'Eq. (3.3.34), ce qui permet d'exprimer la densité spectrale d'énergie rayonnée sous la forme voulue,

$$S(\omega) = S_{ZPL}(\omega) + S_{PSB}(\omega) \quad \text{où} \quad \begin{aligned} S_{ZPL}(\omega) &= 2\text{Re}[\mathcal{S}_{ZPL}(\omega)], \\ S_{PSB}(\omega) &= 2\text{Re}[\mathcal{S}_{PSB}(\omega)], \end{aligned} \quad (3.3.35)$$

avec

$$\mathcal{S}_{ZPL}(\omega) = |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} dt g_P^{(1)}(t+\tau, t) e^{-i\omega\tau}, \quad (3.3.36a)$$

$$\mathcal{S}_{PSB}(\omega) = |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} dt g_P^{(1)}(t+\tau, t) \left( e^{\varphi(\tau)} - 1 \right) e^{-i\omega\tau}. \quad (3.3.36b)$$

Nous constatons bien que  $\mathcal{S}_{ZPL}(\omega)$  ne dépend plus du couplage linéaire aux phonons, et que toute cette contribution se retrouve dans  $\mathcal{S}_{PSB}(\omega)$  via le facteur  $(e^{\varphi(\tau)} - 1)$ . Ceci justifie le fait de parler de manière indépendante de ZPL et de PSB.

Pour les ZPL, le calcul se fait directement en utilisant l'Eq. (3.3.31), nous obtenons

$$S_{ZPL}(\omega) = \tilde{A} B^2 \frac{1}{\left(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd}\right)^2 + (\omega - \omega_X)^2}, \quad (3.3.37)$$

où  $\tilde{A}$  est une constante. Nous constatons que l'interaction quadratique avec le bain de phonons ne fait qu'élargir la raie de luminescence en conservant sa forme lorentzienne (voir Figure 3.15 (a)), et nous parlons alors d'élargissement homogène.

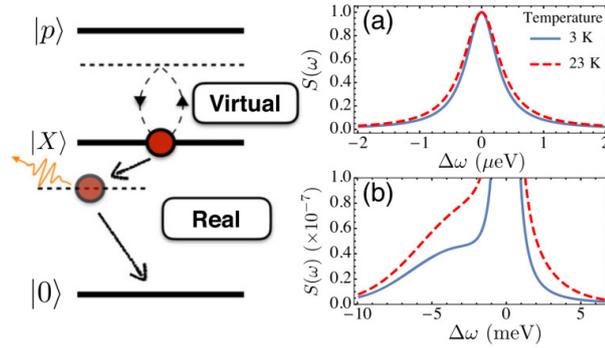


FIGURE 3.15 – Impact des transitions réelles (a) et virtuelles (b) assistées par phonons sur le spectre de luminescence [121]. Les transitions virtuelles, associées au couplage quadratique aux phonons, entraînent un élargissement de la ZPL. Les transitions réelles, associées au couplage linéaire aux phonons, entraînent l'apparition des PSB.

Pour la partie PSB, nous commençons par remarquer que  $(e^{\varphi(\tau)} - 1)$  vaut zéro après un temps caractéristique de l'ordre de la picoseconde (similaire à la décroissance de la fonction de corrélation  $C_{ph}^{(1)}(\tau)$  visible sur la Figure 3.14). La décroissance de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  pour la variable  $\tau$  se faisant sur un temps  $1/\Gamma$  beaucoup plus long de l'ordre de la nanoseconde, il est possible de prendre cette contribution constante dans l'intégrale Eq. (3.3.36b), de telle sorte que

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{PSB}(\omega) &\approx |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} dt e^{i(\omega_X - \omega)\tau} e^{-\Gamma t} \left( e^{\varphi(\tau)} - 1 \right) \\ &= \frac{|K|^2 B^2}{\Gamma} \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_X - \omega)\tau} \left( e^{\varphi(\tau)} - 1 \right) \\ &\approx \frac{|K|^2 B^2}{\Gamma} \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_X - \omega)\tau} \varphi(\tau), \end{aligned} \quad (3.3.38)$$

où la dernière égalité a été obtenue en ne conservant que les termes d'ordre un en  $\varphi(\tau)$ , ce qui est valable dans la gamme de température où nous travaillons. Nous en déduisons que la partie PSB du spectre de luminescence est donnée par

$$S_{PSB}(\omega) = \frac{2|K|^2 B^2}{\Gamma} \int_0^{+\infty} d\tau \operatorname{Re} \left[ e^{i(\omega_X - \omega)\tau} \varphi(\tau) \right]. \quad (3.3.39)$$

En utilisant l'expression de  $\varphi(\tau)$  donnée Eq. (3.3.33), en décomposant  $e^{i(\omega_X - \omega)\tau}$  dans le plan complexe, et en utilisant le fait que  $\int_0^{\infty} d\tau e^{-(\omega - \omega')\tau} = \pi \delta(\omega - \omega')$ , nous obtenons

$$S_{PSB}(\omega) = \frac{2\pi\alpha}{\hbar^2\Gamma} |K|^2 B^2 (\omega - \omega_X) e^{-\left(\frac{\omega - \omega_X}{\nu_c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar(\omega - \omega_X)}{2}\right) - 1 \right]. \quad (3.3.40)$$

Nous traçons Figure 3.15 (b) le spectre de luminescence en prenant en compte la contribution de l'équation (3.3.40), et nous observons l'apparition d'un épaulement de part et d'autre de la ZPL dépendant de la température. C'est la raison pour laquelle le couplage linéaire au bain de phonons est attribué à l'apparition des PSB. Nous remarquerons que comme il est toujours possible d'émettre un phonon, il existe toujours un épaulement du côté des basses énergies de la raie de luminescence. Ainsi, l'indiscernabilité des photons émis par une BQ est toujours affectée par l'interaction avec les phonons, même à température nulle.

Enfin, nous concluons cette partie en présentant Figure 3.16 des ajustements de données expérimentales pour différentes températures en utilisant l'équation (3.3.40) pour la partie PSB. Pour la ZPL, la largeur à mi-hauteur est donnée par la résolution du spectromètre. Nous observons un bon accord théorie - expérience qui nous permet d'extraire une valeur de la fréquence de coupure de l'ordre de  $\hbar\nu_c \approx 1.3 \text{ meV}$ , correspondant à une boîte de 3.5 nm de hauteur ce qui est tout à fait cohérent avec les tailles usuelles de BQ. Nous allons voir dans la partie suivante, que la perte d'indiscernabilité mesurée dans une expérience de type HOM est due à la fois à l'existence des PSB, et à l'élargissement de la ZPL.

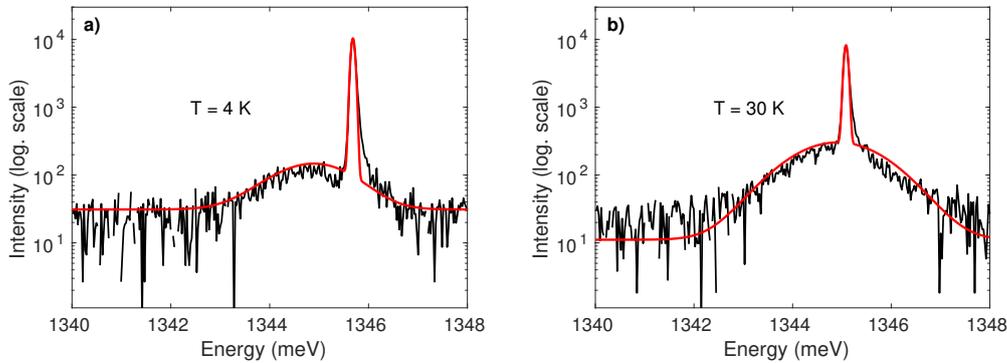


FIGURE 3.16 – Spectres de luminescence d'une BQ sous excitation résonante à  $T = 4 \text{ K}$  (a) et  $T = 30 \text{ K}$  (b). En rouge des ajustements prenant en compte la contribution de la ZPL et des PSB Eq. (3.3.40).

### 3.3.5 Calcul de l'indiscernabilité

A ce stade, nous avons tous les éléments pour calculer l'indiscernabilité (donnée Eq (3.2.19)) des photons émis par une BQ et mesurée dans un montage de type HOM,

$$\mathcal{I} = \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau |\langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle|^2}{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t+\tau) \rangle}. \quad (3.3.41)$$

En écrivant  $\mathcal{I} = \mathcal{I}_N / \mathcal{I}_D$  où  $\mathcal{I}_N$  et  $\mathcal{I}_D$  sont le numérateur et dénominateur de l'expression (3.3.41), et en utilisant Eq. (3.3.30) qui permet de séparer la fonction de corrélation du champ en deux contributions, une pour la ZPL, et une pour les PSB, nous obtenons

$$\mathcal{I}_N = |K|^2 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \left| g_P^{(1)}(t+\tau, t) \right|^2 \left| \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) \right|^2, \quad (3.3.42a)$$

$$\mathcal{I}_D = |K|^2 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau g_P^{(1)}(t, t) g_P^{(1)}(t+\tau, t+\tau) \left( \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(0) \right)^2, \quad (3.3.42b)$$

où nous avons utilisé le fait que  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t+\tau, t) = \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$  (voir annexe G.1). En utilisant l'expression de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  Eq. (3.3.31) et celle de  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$  Eq. (3.3.32), les équations (3.3.42) se réécrivent

$$\mathcal{I}_N = \mathcal{I}_N^{ZPL} + \mathcal{I}_N^{PSB}, \quad (3.3.43a)$$

$$\mathcal{I}_D = \frac{|K|^2 \pi^2}{2\Gamma^2}, \quad (3.3.43b)$$

où pour l'expression du numérateur, nous avons utilisé une décomposition similaire aux équations (3.3.36), de telle sorte que

$$\mathcal{I}_N^{ZPL} = |K|^2 B^4 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \left| g_P^{(1)}(t+\tau, t) \right|^2, \quad (3.3.44)$$

$$\mathcal{I}_N^{PSB} = |K|^2 B^4 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \left| g_P^{(1)}(t+\tau, t) \right|^2 \left( \left| e^{\varphi(\tau)} \right|^2 - 1 \right). \quad (3.3.45)$$

En remarquant que les photons émis dans les PSB le sont à des énergies décalées de l'ordre du meV par rapport à la ZPL qui a une largeur de l'ordre du  $\mu\text{eV}$ , nous pouvons considérer que les PSB ne contribuent pas au numérateur de l'indiscernabilité puisque ces photons sont nécessairement discernables de ceux émis dans la ZPL. Nous avons alors

$$\mathcal{I}_N \approx \mathcal{I}_N^{ZPL} \quad (3.3.46)$$

$$\begin{aligned} &= |K|^2 B^4 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{-2\Gamma t} e^{-(\Gamma+2\gamma_{pd})\tau} \\ &= \frac{|K|^2 B^4 \pi^2}{2\Gamma(\Gamma+2\gamma_{pd})}, \end{aligned} \quad (3.3.47)$$

et nous en déduisons finalement que l'indiscernabilité des photons émis par une BQ est de la forme

$$\mathcal{I} = \frac{\Gamma}{\Gamma+2\gamma_{pd}} B^4. \quad (3.3.48)$$

Deux contributions distinctes sont présentes dans l'expression de l'indiscernabilité ci-dessus. La première intervient à travers le facteur  $B^4$  et est due au couplage linéaire aux vibrations du réseau

crystallin associé à des transitions réelles assistées par phonons. Cette interaction a pour conséquence de fixer une valeur maximale à l'indiscernabilité puisque les photons émis dans les PSB le sont à des énergies différentes de ceux de la ZPL, ce qui les rend discernables. La deuxième contribution vient du facteur  $2\gamma_{pd}$  qui est responsable de l'élargissement homogène de la ZPL et est dû à l'existence de transitions virtuelles assistées par phonon.

### 3.3.6 Comparaison aux données expérimentales

Afin de comparer les prédictions du modèle microscopique présenté dans la deuxième partie de ce chapitre aux données expérimentales de la Figure 3.9, il est utile de se rappeler que dans notre expérience, les BQ se trouvent dans un guide 1D réalisé dans une cavité planaire à miroirs de Bragg décrite dans la partie 2.2.3, et dont une image MEB est donnée Figure 3.17 (a). Malgré le fait que le facteur de qualité de cette cavité soit seulement de l'ordre de quelques centaines (voir Figure 2.5), sa bande passante étant de quelques meV, une partie des PSB est filtrée comme représenté Figure 3.17 (b), et ne participe donc pas à la perte d'indiscernabilité.

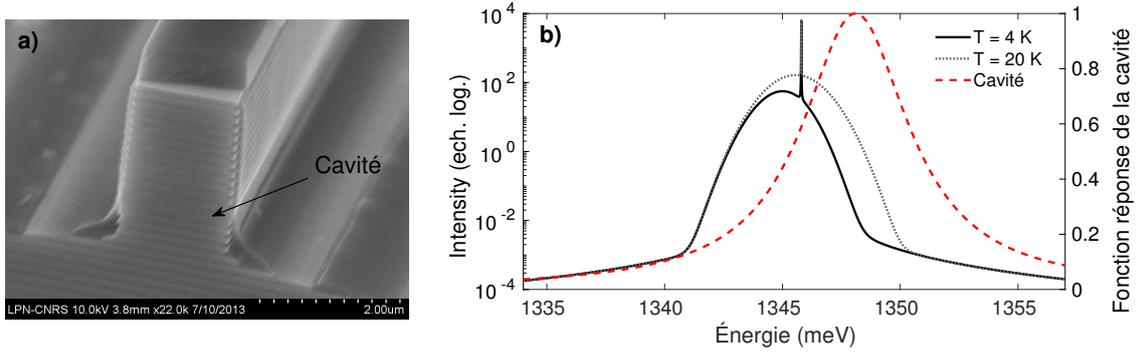


FIGURE 3.17 – (a) Image MEB de l'échantillon S1 après gravure. Nous distinguons la cavité dans laquelle se trouvent les BQ ainsi que les miroirs de Bragg responsables du filtrage spectral des photons émis dans la direction orthogonale au guide. (b) Spectres de luminescence d'une BQ (trait plein) à  $T = 4$  K (noir) et  $T = 20$  K (pointillés gris) en échelle log calculés à partir des équations (3.3.37) et (3.3.40) (la proportion ZPL-PSB étant déterminé expérimentalement). Nous traçons aussi la réponse spectrale de la cavité pour  $\kappa = 5.5$  meV et  $\omega_X - \omega_{cav} = 2.3$  meV (pointillé rouge) : une partie des PSB est filtrée par la cavité.

Le filtrage de la luminescence de la BQ par la cavité peut être considéré en définissant la fonction de réponse spectrale de la cavité tracée Figure 3.17 (b),

$$|h(\omega)|^2 = \frac{(\kappa/2)^2}{(\kappa/2)^2 + (\omega - \omega_{cav})^2}, \quad (3.3.49)$$

où  $\kappa$  est la largeur à mi-hauteur de la fonction de réponse et  $\omega_{cav}$  sa fréquence centrale. Son impact sur la valeur de l'indiscernabilité est pris en compte en exprimant  $\mathcal{I}$  dans le domaine fréquentiel et le calcul complet est présenté dans l'annexe J. En définissant le facteur de filtrage de la cavité  $\mathcal{F}$  comme le rapport entre l'intensité intégrée des PSB sortant de la cavité et l'intensité intégrée

totale des PSB, nous montrons que l'indiscernabilité est donnée par

$$\mathcal{I} = \frac{\Gamma}{\Gamma + 2\gamma_{\text{pd}}} \left[ \frac{B^2 |h(\omega_X)|^2}{B^2 |h(\omega_X)|^2 + \mathcal{F}(1 - B^2)} \right]^2, \quad (3.3.50)$$

avec

$$\mathcal{F} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |h(\omega + \omega_X)|^2 \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu_c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) - 1 \right]}{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu_c}\right)^2} \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right)}. \quad (3.3.51)$$

Nous constatons que dans le cas où nous ne prenons pas en compte le filtrage spectral de la cavité, c'est-à-dire lorsque  $\mathcal{F} = 1$  et  $|h(\omega_X)|^2 = 1$ , nous retrouvons l'expression (3.3.48) obtenue précédemment. Au contraire, si nous supposons que la cavité permet de filtrer l'intégralité des PSB, c'est-à-dire si  $\mathcal{F} = 0$ , nous obtenons  $I = \Gamma/(\Gamma + 2\gamma_{\text{pd}})$  et la perte d'indiscernabilité est uniquement due à l'élargissement de la ZPL.

La Figure 3.18 présente les mesures d'indiscernabilité réalisées sur les BQ 1 et 2 du Tableau 3.2 en fonction de la température. Les données expérimentales sont ajustées par l'expression (3.3.50) où la valeur de  $\Gamma = 1/T_1$  est obtenue par des mesures de photoluminescence résolue en temps avec  $T_1 = 1100 \pm 20$  ps pour la BQ 1 et  $T_1 = 750 \pm 15$  ps pour la BQ 2, et où  $\kappa$  et  $\omega_X - \omega_{\text{cav}}$  sont obtenus grâce à des mesures de luminescence non résonante sous forte puissance d'excitation (présentées Figure 2.5 (a) pour BQ1 et (b) pour BQ2). Nous observons un bon accord entre le modèle théorique et les résultats expérimentaux. En particulier, nous parvenons à expliquer à la fois le plateau pour les "basses" températures ainsi que la chute rapide au delà de 12 K, et ce grâce à la prise en compte des transitions virtuelles assistées par phonon, associées au couplage quadratique aux phonons. En effet, nous traçons en pointillés violets la contribution des PSB à la perte d'indiscernabilité et nous

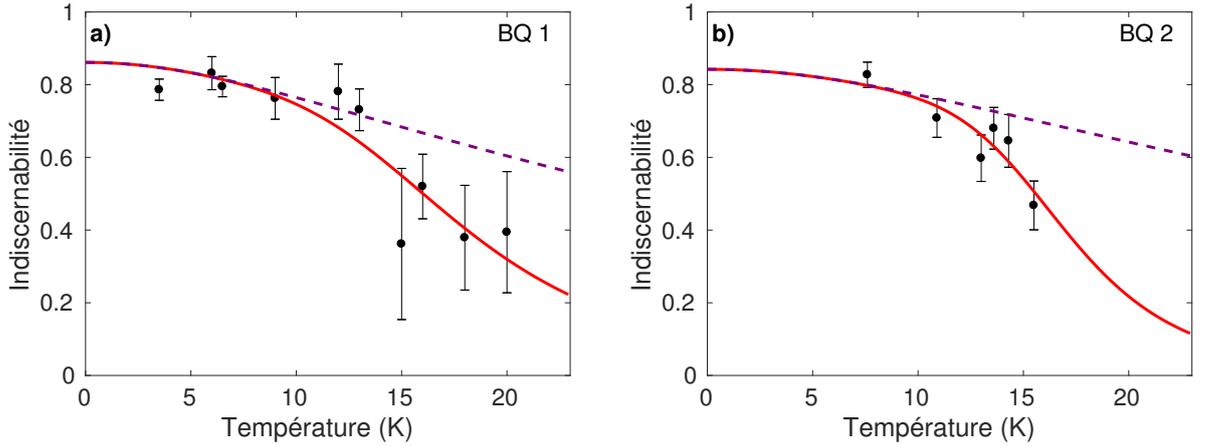


FIGURE 3.18 – Mesure de l'indiscernabilité des photons émis par les BQ 1 (a) et 2 (b) en fonction de la température. L'indiscernabilité reste presque constante pour des températures inférieures à 12 K puis chute pour des températures plus élevées. La courbe rouge est un ajustement des données expérimentales par l'équation (3.3.50) qui prend en compte les contributions des PSB et de la ZPL. La courbe en pointillés violets montre uniquement la contribution des PSB.

constatons que cette contribution ne peut expliquer à elle seule la chute rapide d'indiscernabilité pour les "hautes" températures. Ainsi, les transitions réelles assistées par phonons sont responsables de la chute d'indiscernabilité en dessous de 10 K, alors que les transitions virtuelles le sont à plus haute température.

Cette procédure nous permet d'extraire la fréquence de coupure des phonons  $\nu_c$  reliée à la taille de la BQ, ainsi que les paramètres  $\alpha$  et  $\mu$  intervenant dans les fonctions de corrélation du bain de phonon. Pour la BQ 1, nous obtenons  $\hbar\nu_c = 8 \text{ meV}$ ,  $\alpha/\hbar^2 = 0.008 \text{ ps}^2$ ,  $\mu = 5 \times 10^{-4} \text{ ps}^2$  et pour la BQ 2  $\hbar\nu_c = 12 \text{ meV}$ ,  $\alpha/\hbar^2 = 0.007 \text{ ps}^2$ ,  $\mu = 6 \times 10^{-4} \text{ ps}^2$ . Nous constatons que les valeurs obtenues pour les fréquences de coupure correspondent à des boîtes de hauteur légèrement inférieure au nanomètre ce qui est faible mais reste du bon ordre de grandeur. Ensuite, les valeurs théoriques des deux autres paramètres étant  $\alpha/\hbar^2 = 0.1 \text{ ps}^2$  et  $\mu = 0.06 \text{ ps}^2$ , nous voyons que nous obtenons des valeurs sensiblement inférieures mais qui peuvent s'expliquer, surtout pour  $\mu$ , par le fait que ces constantes dépendent de nombreux paramètres dont les valeurs sont obtenues expérimentalement. Notons que les constantes  $\alpha$  et  $\mu$  caractérisent la force des couplages linéaire et quadratique.

Enfin, le modèle microscopique développé ici met clairement en évidence le fait qu'un filtrage des PSB, en utilisant par exemple une cavité Fabry-Perot avant l'interféromètre de Mach-Zehnder, ou en insérant les BQ dans des cavités de très grands facteurs de qualité, permet d'obtenir un bien meilleur degré d'indiscernabilité, comme l'on mis récemment en évidence Grange *et al* [131]. Dans ce papier, les auteurs montrent que l'effet de la cavité sur l'indiscernabilité est double. Premièrement, elle a pour effet de minimiser la proportion de photons émis dans les PSB en forçant l'émission dans la ZPL (cavity feeding). Cela permet de minimiser la perte d'indiscernabilité due au couplage linéaire aux phonons tout en préservant une bonne efficacité d'émission. Deuxièmement, grâce à un facteur de Purcell élevé ( $F \sim 25$ ), le temps de vie de l'état excité est de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, ce qui permet de minimiser les effets dus au couplage quadratique et donc de diminuer l'élargissement de la ZPL, maximisant ainsi l'indiscernabilité.

### 3.4 Conclusion

Pour conclure, nous avons dans un premier temps dans ce chapitre mis en évidence que des mesures d'indiscernabilité de photons émis par une BQ et réalisées dans un dispositif de type HOM, permettent de ne sonder que les interactions entre la BQ et les vibrations de la matrice solide. De plus, contrairement à ce que nous pouvons trouver dans la littérature, la mesure du temps de cohérence par STF (ou par mesure directe de la largeur de la raie de luminescence), ne nous renseigne absolument pas sur le degré d'indiscernabilité des photons émis si les photons qui interfèrent sont émis avec un délai petit devant la microseconde. Le système expérimental utilisé pendant cette thèse constitue donc un système modèle pour l'étude des processus de décohérence dus à l'interaction électron-phonon. Nous avons réalisé des mesures de l'indiscernabilité en fonction de la température afin de sonder cette interaction tout en faisant varier la population de phonons, et des résultats similaires ont été obtenus pour deux BQ distinctes.

Dans une deuxième partie, nous avons développé un modèle microscopique prenant en compte l'interaction avec le champ électromagnétique et avec les phonons acoustiques, afin d'interpréter les résultats expérimentaux. L'originalité de ce modèle a été de tenir compte non seulement du

---

couplage linéaire au bain de phonons, mais aussi du couplage quadratique. Nous avons montré que le premier est dû à des transitions réelles assistées par les phonons acoustiques de la matrice de GaAs environnante et est responsable de l'apparition des PSB dans le spectre de luminescence, entraînant une baisse de l'indiscernabilité à basse température. Le couplage quadratique est quant à lui associé à des transitions virtuelles assistées par phonons et est responsable d'un élargissement homogène de la ZPL, qui entraîne une perte d'indiscernabilité pour les photon émis quand la température dépasse 10 K. Enfin, ce modèle a permis de montrer qu'un filtrage spectral permet de maximiser l'indiscernabilité à basse température mais que sa chute reste inévitable quand la température augmente, à moins de diminuer le temps de vie radiatif de l'état excité par effet Purcell.



## Chapitre 4

# Étude de l'interaction entre une boîte quantique et une mer de Fermi

## Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>125</b>
<b>4.2</b>	<b>Contrôle de l'état de charge d'une boîte quantique</b>	<b>126</b>
4.2.1	Étude non résonante et identification des raies de luminescence	126
4.2.2	Étude résonante du trio $X^-$	129
4.2.3	État de charge des boîtes quantiques étudiées	130
4.2.3.1	États considérés	130
4.2.3.2	Définition des seuils	132
4.2.3.3	Interprétation des résultats expérimentaux	134
4.2.4	Efficacité de l'émission	136
<b>4.3</b>	<b>Interaction avec la mer de Fermi</b>	<b>139</b>
4.3.1	Influence de la température sur l'émission de la luminescence résonante	139
4.3.2	Évolution du temps de cohérence	140
4.3.3	Piste pour une interprétation quantitative	142
4.3.3.1	Idée générale	142
4.3.3.2	Réécriture de l'intensité	143
4.3.3.3	États propres du Hamiltonien d'Anderson	144
<b>4.4</b>	<b>Quelques résultats sur l'apparition d'une deuxième raie de luminescence résonante</b>	<b>144</b>
4.4.1	Observation de battements dans les expériences de spectroscopie par transformée de Fourier	144
4.4.2	Effet de la puissance d'excitation	145
4.4.3	Effet de la tension appliquée	147
4.4.4	Discussion	148
<b>4.5</b>	<b>Conclusion</b>	<b>149</b>

---

## 4.1 Introduction

Nous avons discuté dans la partie 3.2.1 qu'une BQ interagissait fortement avec son environnement via les vibrations du réseau cristallin [35, 36], l'environnement électrostatique fluctuant [37, 38, 39], ou encore l'interaction avec les spins nucléaires des ions composant la matrice solide [40, 41]. Nous avons évoqué dans la partie 2.2.5 que les fluctuations de l'environnement électrostatique sont dues à la présence de défauts dans la couche de mouillage aux alentours de la BQ, qui jouent le rôle de pièges électrostatiques pour les porteurs, et peuvent empêcher l'observation de la luminescence sous excitation résonante [90, 132]. Expérimentalement, ceci constitue un problème majeur puisqu'il est impossible d'observer de la luminescence résonante pour la plupart des BQ étudiées. Il a été mis en évidence au début des années 2010 que l'utilisation d'un laser non résonant peut permettre de retrouver le signal de luminescence résonante<sup>1</sup> [90, 91] et de nombreux groupes à l'heure actuelle utilisent cette méthode [92, 103, 45]. Cependant, bien que cette technique ait démontré son efficacité, l'origine des processus physiques mis en jeu n'a été que peu étudiée, ce qui rend une description précise du système compliquée. C'est la raison pour laquelle il est primordial de contrôler de façon déterministe l'état de charge d'une BQ, afin d'être en mesure de réaliser l'excitation résonante de manière systématique et efficace.

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus sur l'échantillon dopé électriquement présenté dans la partie 2.2.3.2, où il est possible d'appliquer un champ électrique au niveau du plan de BQ dans la direction de croissance. Nous rappelons que la structure de bande de l'échantillon ainsi qu'un schéma de la structure sont présentés dans les Figures 2.6 et 2.7 du chapitre 2. Nous commencerons par montrer que la structure originale de cet échantillon permet un contrôle de l'état de charge des BQ ce qui conduit à l'observation systématique de la luminescence sous excitation résonante. Le couplage par effet tunnel entre la mer de Fermi et la BQ a pour conséquence de fixer l'état de charge de la boîte en fonction du champ appliqué. Nous avons étudié dix BQ au total, présentant toutes le même comportement. Ainsi, nous ne présentons dans ce chapitre que les résultats obtenus sur une seule BQ.

Dans un deuxième temps, nous étudierons les processus d'interaction avec la mer de Fermi et mettrons en évidence que cette interaction peut être contrôlée, selon la tension appliquée. Nous présenterons des mesures de temps de cohérence par spectroscopie par transformée de Fourier (STF). Nous montrerons que l'étude de la luminescence en fonction de la température permet de sonder la distribution d'occupation de la mer selon la statistique de Fermi-Dirac. Malgré le fait que ces expériences soient très récentes et pour l'instant partiellement comprises, nous donnons des pistes pour leur interprétation en fin de chapitre.

---

1. En fait, Nguyen *et al* [90, 132] ont seulement montré que la luminescence de l'exciton neutre n'est pas observable à cause des pièges électrostatiques proches de la boîte. En réalité, nous constatons expérimentalement que la luminescence résonante de n'importe quel état de la BQ est souvent difficile à observer et que l'utilisation d'un laser non résonant permet aussi de retrouver, ou d'exalter, la luminescence des états chargés.

## 4.2 Contrôle de l'état de charge d'une boîte quantique

### 4.2.1 Étude non résonante et identification des raies de luminescence

Nous commençons par discuter les résultats d'expériences de micro-photoluminescence ( $\mu$ PL) sous excitation non-résonante, qui nous permettent d'identifier les états observés. La Figure 4.1 présente une carte 2D des spectres de  $\mu$ PL en fonction de la tension appliquée. Nous observons une raie de luminescence autour de 1345 meV qui persiste sur la quasi totalité de la gamme de tension explorée. L'étude de la polarisation de cette raie de luminescence semble indiquer (et nous le vérifierons dans la suite) qu'il s'agit d'un état chargé puisque nous n'observons pas de splitting de structure fine. Les tensions appliquées ici sortent de la gamme dans laquelle il est possible de travailler sans faire passer de courant dans l'échantillon (voir la caractéristique I-V de la diode Figure 4.1), l'idée étant simplement dans cette partie d'identifier les différents états de la boîte

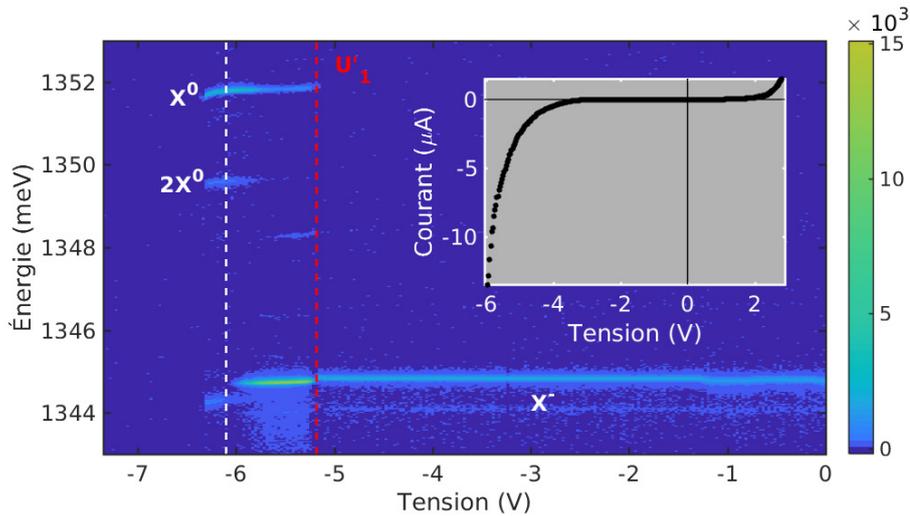


FIGURE 4.1 – Carte 2D de la luminescence sous excitation non-résonante en fonction de la tension appliquée sur l'échantillon. Nous présentons aussi la caractéristique I-V de la diode à 4K qui montre que pour des tensions inférieures à  $-5$  V, le courant qui passe dans l'échantillon excède le microampère. Les pointillés blancs précisent la tension à laquelle a été réalisée l'étude en polarisation de la Figure 4.2 et les pointillés en rouge indiquent le seuil d'apparition de la paire électron-trou neutre à la tension  $U_1' = -5.2$  V. La faible luminescence à 1344 meV est due à la présence d'une autre boîte proche de celle étudiée.

L'analyse de la polarisation des raies de luminescence se trouvant à 1349.5 meV et 1352 meV et apparaissant pour des tensions inférieures à  $U_1' = -5.2$  V (pointillés rouges), a été réalisée à une tension de  $-6.1$  V (pointillés blancs) en suivant la procédure décrite dans la partie 2.3.2, et les résultats sont présentés Figure 4.2 (a). Nous constatons que la position du maximum d'intensité pour les deux raies en question oscille en fonction de l'angle de rotation de la lame  $\lambda/2$ . Comme mentionné dans la partie 2.3.2, cela signifie que ces raies sont composées de deux transitions issues de deux états dont l'écart en énergie est plus petit que la résolution du spectromètre. Nous en déduisons que ces états correspondent à la paire électron-trou neutre  $X^0$  et à la double paire électron-trou  $2X^0$ , en accord avec le fait que les deux raies oscillent en opposition (voir Figure 1.13). Afin de

différencier ces deux états, nous avons mesuré l'intensité des deux raies en fonction de la puissance d'excitation, et nous présentons les résultats en échelle log-log dans la Figure 4.2 (b), où les ronds noirs (losanges bleus) correspondent à l'intensité intégrée de la raie à 1352 meV (1349.5 meV). Nous observons que l'intensité de la première varie linéairement avec la puissance, avant de saturer (données non montrées), alors que l'intensité de la deuxième varie de manière sur-linéaire. Nous en déduisons que la raie à 1352 meV correspond à la paire électron-trou neutre  $X^0$ , et que la raie à 1349.5 meV correspond à la double paire électron trou  $2X^0$  [133, 134, 135]. Notons que l'intensité de la raie  $2X^0$  ne varie pas quadratiquement avec la puissance d'excitation comme nous pourrions nous y attendre, mais que cela a déjà été observé expérimentalement [136].

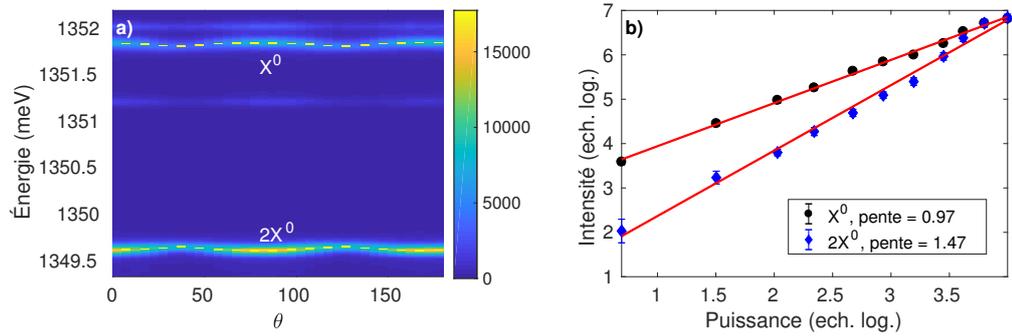


FIGURE 4.2 – Étude des raies de luminescence apparaissant pour des tensions inférieures à  $U_1' = -5.2$  V. (a) Analyse de la polarisation des raies de luminescence à 1349.5 meV et 1352 meV grâce au montage décrit dans la partie 2.3.2. (b) Étude de l'évolution de l'intensité des deux mêmes raies en fonction de la puissance d'excitation.

Afin de déterminer si la raie de luminescence se trouvant à 1345 meV (voir Figure 4.1) correspond à l'état  $X^+$  ou  $X^-$ , nous avons mesuré le taux de maintien de polarisation sous excitation circulaire. En effet, lors de la création d'un trio par une excitation polarisée circulairement en régime pulsé, l'état du porteur seul (l'électron dans le cas de  $X^+$ , le trou dans celui de  $X^-$ ) est totalement déterminé à l'instant initial. La Figure 4.3 (a) présente le cas d'une excitation de polarisation  $\sigma_+$  qui crée une paire électron-trou de moment cinétique total  $J = +1$ . Le temps caractéristique de retournement du spin de ce porteur, dû à l'interaction avec les spins nucléaires environnant non polarisés<sup>1</sup>, détermine donc le taux de maintien de polarisation

$$\rho = \frac{|I_{\sigma_+} - I_{\sigma_-}|}{I_{\sigma_+} + I_{\sigma_-}}, \quad (4.2.1)$$

où  $I_{\sigma_{\pm}}$  est l'intensité de la luminescence émise par la BQ avec la polarisation  $\sigma_{\pm}$ . Lorsque le temps de retournement du spin est grand (petit) devant le temps de vie de l'état excité, le maintien de polarisation est total (nul) et  $\rho = 1$  ( $\rho = 0$ ).

Dans le cas de l'état  $X^+$ , le taux de maintien de la polarisation est contrôlé par le temps caractéristique de retournement du spin de l'électron, et Braun *et al* [112, 137] ont mesuré que ce temps est de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes dans les BQ InAs/GaAs. La Figure 4.3 (b)

1. Il est important de noter que ce résultat n'est valide que pour une excitation pulsée. Dans le cas d'une excitation continue, la préparation permanente d'un état de spin déterminé dans la boîte a pour conséquence de polariser les spins nucléaires, et ainsi de détruire l'anisotropie du champ magnétique créé.

reprend les résultats des auteurs, qui mesurent une décroissance rapide de la polarisation de la luminescence émise, dans le cas où le champ magnétique externe est nul (courbe noire). De plus, en prenant en compte ce temps caractéristique de décroissance ainsi que le temps de vie radiatif des BQ, il est possible de montrer, que pour un état  $X^+$ , le taux de maintien de polarisation ne peut excéder 45 % [138]. Dans le cas de l'état  $X^-$ , le taux de maintien de la polarisation est contrôlé par le temps caractéristique de retournement du spin du trou, et Laurent *et al* [139] ont mesuré dans une expérience similaire présentée Figure 4.3 (c), que ce temps est supérieur à 20 ns (correspondant au temps long de décroissance de la courbe rouge).

Ainsi, nous avons mesuré le taux de maintien de polarisation de la raie à de 1345 meV en utilisant le montage présenté dans la Figure 4.3 (d). Afin d'être en mesure d'exciter la BQ avec une polarisation  $\sigma_{\pm}$ , il est nécessaire que l'excitation se fasse par la face de l'échantillon. En conséquence,

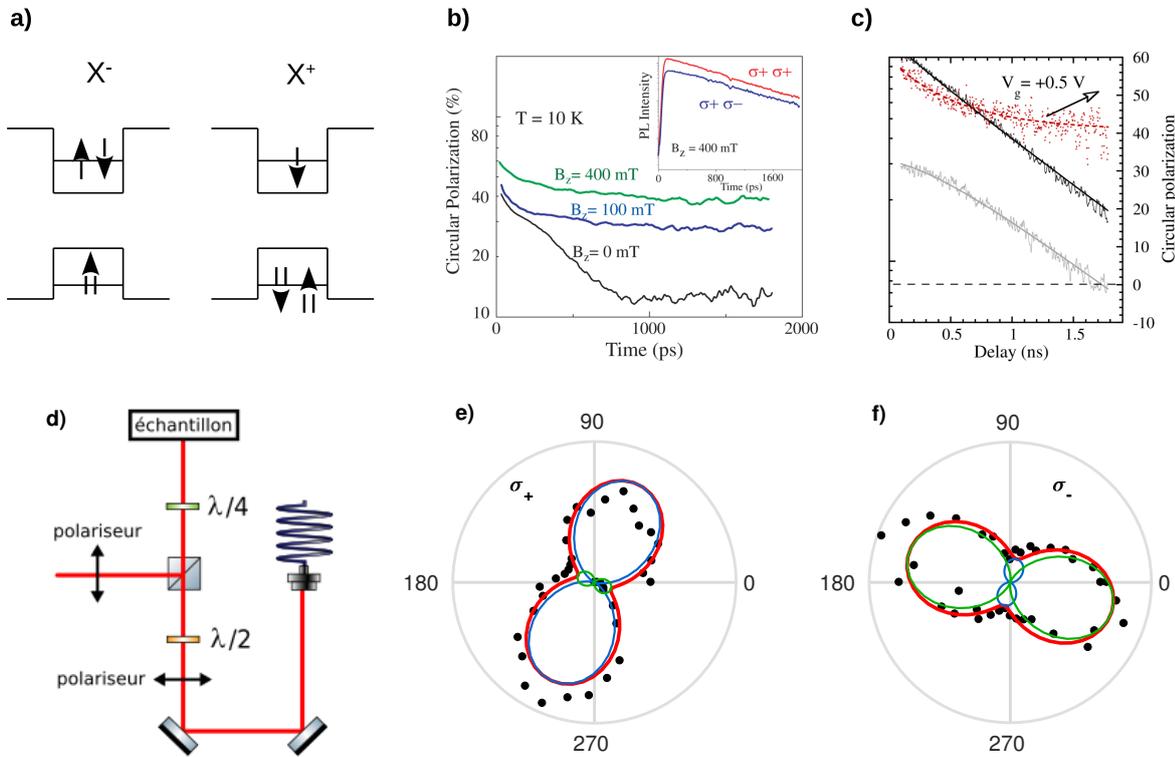


FIGURE 4.3 – (a) États  $X^-$  et  $X^+$  dans une BQ. (b) Taux de polarisation de la luminescence de l'état  $X^+$  sous champ magnétique nul (noir) [137]. Le temps caractéristique de retournement du spin de l'électron est de plusieurs centaines de picosecondes. (c) Taux de polarisation de la luminescence de l'état  $X^-$  [139] sous excitation circulaire (points rouges). Le temps caractéristique de retournement du trou est de plus de 20 ns. (d) Montage expérimental pour la mesure du taux de maintien de polarisation de la luminescence émise par une BQ sous excitation circulaire et non-résonante. (e) et (f) Diagrammes de polarisation de la luminescence pour une excitation selon les deux polarisations circulaires. Les données sont ajustées par la somme de deux cosinus carré déphasés de  $\pi/2$  (traits rouges) et nous traçons aussi les deux contributions séparément (traits bleus et verts). Nous mesurons des taux de maintien de polarisation de 74 % (e) et 65 % (f), indiquant qu'il s'agit de l'état  $X^-$ .

l'excitation résonante est impossible et nous sommes contraints d'exciter dans la couche mouillage. De plus, la lame  $\lambda/4$  nous permettant de transformer la polarisation linéaire en polarisation circulaire pour l'excitation, entraîne que la luminescence polarisée initialement  $\sigma_{\pm}$ , est transformée en une superposition de polarisations linéaires. Par la suite, l'analyse de la polarisation est réalisée en suivant le même principe que celui décrit dans la partie 2.3.2. Nous présentons Figure 4.3 (e) et (f) les diagrammes de polarisation de la luminescence pour une excitation selon les deux polarisation circulaires. Un ajustement correspondant à la somme de deux cosinus carré déphasés de  $\pi/2$  permet d'extraire les contributions de chaque polarisation, et ainsi de remonter aux valeurs de  $I_{\sigma_+}$  et  $I_{\sigma_-}$ . Nous en déduisons des taux de maintien de polarisation de 74 % (e) et 65 % (f), ce qui indique que la raie observée correspond à la luminescence du trio  $X^-$ .

#### 4.2.2 Étude résonante du trio $X^-$

Nous présentons Figure 4.4 (a) le spectre d'émission de la raie  $X^-$  sous excitation résonante et en fonction de la tension appliquée. Nous observons la luminescence lorsque la tension est comprise entre deux tensions seuils  $U_1 = -4.4$  V et  $U'_2 = -2.1$  V. Comme dans le cas des expériences sous excitation non-résonante, les dix BQ étudiées sur cet échantillon ont toutes le même comportement, et les positions moyennes des seuils sont  $U'_2 = -2.4 \pm 0.2$  V et  $U_1 = -4.2 \pm 0.2$  V. Nous avons donc pu observer de la luminescence résonante pour chacune d'entre elles démontrant ainsi le succès de ce type de structure. Nous reviendrons dans la partie suivante sur l'interprétation de ces résultats et sur la signification des seuils. De plus, un effet Stark de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$  est observé sur la plage de tension où la raie  $X^-$  existe.

La Figure 4.4 (b) présente des mesures d'oscillations de Rabi en fonction de la tension appliquée. Nous constatons que quelle que soit la tension, l'état du système à deux niveaux peut être contrôlé de manière déterministe. La forme et la période de l'oscillation varient clairement avec la tension, d'une manière similaire au cas d'échantillon non-contacté en présence d'un laser non-résonant He-Ne lorsque sa puissance varie. Nous observons que le maximum d'intensité se décale vers les hautes puissances lorsque la tension diminue. De plus, pour les basses tensions, un épaulement dans l'oscillation apparaît pouvant faire penser à une oscillation de Rabi pour un système à trois niveaux [140]. Néanmoins, nous n'avons à ce jour pas d'explication satisfaisante pour ce comportement.

Nous présentons Figure 4.4 (c) le diagramme de polarisation de la luminescence sous excitation résonante pour une puissance correspondant à des impulsions  $\pi$  et pour une tension  $U = -3$  V. Il est intéressant de remarquer que contrairement à l'échantillon non dopé, pour lequel il est nécessaire de réaliser un ajustement de la luminescence de la boîte ainsi que du laser pour extraire la contribution de la BQ (voir Figure 2.14 (b)), nous pouvons ici directement mesurer la contribution du laser en se plaçant à une tension supérieure à  $U'_2$ . Le fait que la polarisation ne soit pas rectiligne mais elliptique est en accord avec l'observation d'un état chargé. Précisons que nous n'avons pas vu d'évolution du diagramme de polarisation en fonction de la puissance d'excitation ou de la tension appliquée.

Nous avons également réalisé des mesures de temps de vie radiatif pour une puissance d'excitation correspondant à des impulsions  $\pi$  et en fonction de la tension appliquée. Nous avons constaté que la décroissance de la population de l'état excité est mono-exponentiel (voir Figure 4.4 (d)) et

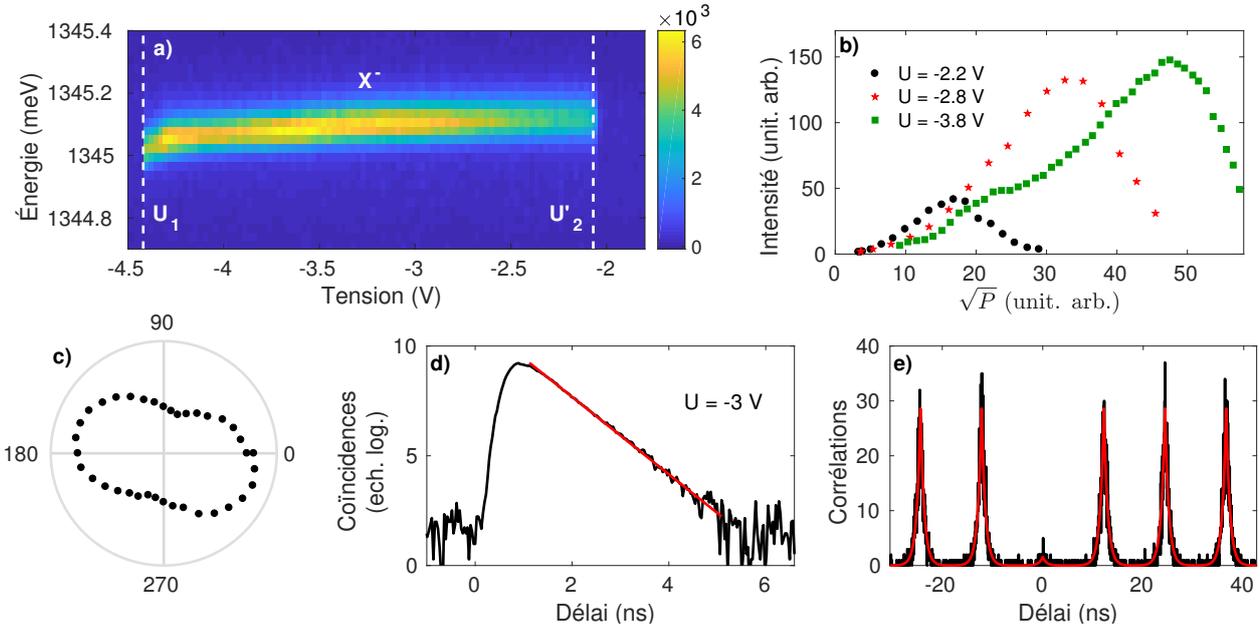


FIGURE 4.4 – Caractéristiques optiques de la raie  $X^-$  sous excitation résonante. (a) Spectre d'émission en fonction de la tension appliquée. (b) Oscillation de Rabi pour  $U = -2.2$  V,  $U = -2.8$  V et  $U = -3.8$  V. (c) Diagramme de polarisation de la luminescence pour une puissance correspondant à une impulsion  $\pi$  et pour une tension  $U = -3$  V. (d) Mesure du temps de vie radiatif à une tension  $U = -3$  V. (e) Histogramme des coïncidences réalisé dans un montage de type HBT pour un temps d'acquisition de 200 s. Le paramètre caractérisant l'unicité des photons émis est  $g = 0.05 \pm 0.02$  et l'ajustement en rouge est une somme d'exponentielles décroissantes dont la largeur est contrôlée par le temps de vie radiatif de l'état excité.

que la valeur du temps de vie mesurée  $T_1 = 566 \pm 13$  ps reste constante avec la tension.

Finalement, malgré la structure élaborée de l'échantillon, les BQ restent de très bonnes sources de photons uniques et la proportion de laser diffusé est faible, comme le montre l'histogramme des coïncidences réalisé dans un montage de type HBT et présenté Figure 4.4 (e), donnant  $g = 0.05 \pm 0.02$ . Nous verrons dans la partie 4.2.4 que cette structure permet aussi la conversion systématique d'une impulsion laser en un photon émis pour la BQ, ce qui fait de ce type d'échantillon un bon candidat pour d'éventuelles applications en information quantique.

### 4.2.3 État de charge des boîtes quantiques étudiées

#### 4.2.3.1 États considérés

Afin d'interpréter les résultats précédents et de comprendre pourquoi la structure de l'échantillon étudié permet l'observation systématique de la luminescence résonante, nous allons justifier la position des seuils apparaissant sur les Figures 4.4 (a) et 4.1, en considérant une BQ en interaction avec une mer de Fermi supposée à température nulle. La Figure 4.5 (a) schématise les différents états de charges de la BQ, sans paire électron-trou photo-créeée (haut) et avec une paire photo-créeée (bas). Dans les deux cas, nous considérons les trois états de charges où zéro, un et deux électron(s) (de gauche à droite) passent par effet tunnel de la mer de Fermi vers la BQ. Afin de connaître la

position des différents seuils qui déterminent le passage d'un état de charge à un autre, nous allons déterminer quels sont les états de plus basse énergie selon la tension appliquée. Pour cela nous utilisons les notations de la Figure 4.5 (b) qui représente la structure électronique typique d'une BQ. Nous appelons  $E_e(U)$  ( $E_h(U)$ ) l'énergie du bas (haut) de la bande de conduction (valence) qui dépend de la tension appliquée  $U$ , et  $\varepsilon_{e,1}$  ( $\varepsilon_{h,1}$ ) l'énergie de confinement de l'état de plus basse énergie de la bande de conduction (valence). Nous notons aussi  $\varepsilon_{e,2}$  l'énergie de confinement du deuxième état de plus basse énergie de la bande de conduction. L'énergie d'un électron dans la bande de conduction est donc donnée par  $E_{e,1}(U) = E_e(U) + \varepsilon_{e,1}$  où  $E_e(U) = E_F + \alpha q(V_{BI} - U) - E_c$ , similaire à l'équation (2.2.2), avec  $\alpha$  le bras de levier de la structure. Nous pouvons remarquer que pour toute tension appliquée,  $E_e(U) + E_h(U) = E_{\text{gap}}^{\text{InAs}}$  puisque pour l'énergie des trous, l'axe des énergies est vers le bas (voir Figure 4.5 (b)). De plus, nous notons  $E_c$  la différence de gap entre GaAs et InAs dans la bande conduction.

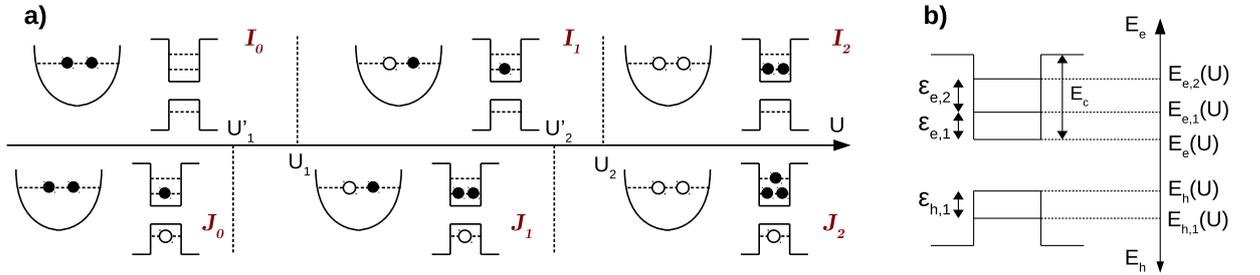


FIGURE 4.5 – (a) Schéma des différents états électroniques d'une BQ proche d'une mer de Fermi, les points noirs représentent les électrons et les cercles blancs les trous. La partie haute du schéma correspond au cas où il n'y a pas de paire électron-trou photo-créeée dans la boîte, et la partie basse au cas où une paire électron-trou est photo-créeée. Nous appelons  $I_n$  ( $J_n$ ) les états sans (avec) paire électron-trou photo-créeée, l'indice  $n$  correspondant au nombre d'électrons qui sont passés de la mer vers la BQ par effet tunnel. (b) Structure électronique typique d'une BQ, les notations introduites ici sont utilisées dans le texte.

Avec ces notations nous pouvons exprimer l'énergie de chacun des états de la Figure 4.5 (a) et nous commençons par le cas où la boîte ne contient pas de paire photo-créeée. Nous noterons  $E_{I_n}$  ( $E_{J_n}$ ) avec  $n = (0, 1, 2)$  les énergies des états où  $n$  électrons sont passés par effet tunnel de la mer de Fermi vers la BQ sans (avec) paire photo-créeée.

#### **État à zéro électron sans paire photo-créeée : $I_0$**

Cet état est représenté en haut à gauche de la Figure 4.5 (a) et dans ce cas, les deux électrons considérés se trouvent dans la mer de Fermi à l'énergie  $E_F$  et la boîte est vide, de telle sorte que

$$E_{I_0} = 2E_F. \quad (4.2.2)$$

#### **État à un électron sans paire photo-créeée : $I_1$**

Dans ce cas, un électron est passé par effet tunnel de la mer vers la boîte et

$$E_{I_1} = E_F + E_{e,1}(U) + \Delta, \quad (4.2.3)$$

où  $\Delta$  est le coût énergétique nécessaire à l'extraction d'un électron de la mer de Fermi. Ce paramètre dépend de la distance  $d_1$  entre la BQ et la mer de Fermi et nous verrons dans la suite qu'il n'intervient plus dans la description des phénomènes observés.

**État à deux électrons sans paire photo-créeé :  $I_2$**

Deux électrons sont passés par effet tunnel dans la boîte,

$$E_{I_2} = 2E_{e,1}(U) + 2\Delta + \delta_{ee}, \quad (4.2.4)$$

où  $\delta_{ee} > 0$  est l'énergie d'interaction coulombienne entre deux électrons dans la boîte. Pour deux électrons dans une boîte de 3 nm, l'énergie Coulombienne est de l'ordre de  $\delta_{ee} \sim 100$  meV.

**État à zéro électron avec paire photo-créeé :  $J_0$**

Cet état est représenté en bas à gauche de la Figure 4.5 (a) et dans ce cas, les deux électrons considérés se trouvent dans la mer de Fermi à l'énergie  $E_F$  et la boîte comporte une paire électron-trou dans l'état de plus basse énergie,

$$E_{J_0} = 2E_F + E_{e,1}(U) + E_{h,1}(U) + \delta_{eh}. \quad (4.2.5)$$

$\delta_{eh}$  est l'énergie coulombienne d'interaction entre l'électron et le trou, c'est-à-dire l'énergie de liaison de la paire. Elle est représentée Figure 1.8 en fonction de la taille du confinement, dans le cas de barrières de potentiel infinies.

**État à un électron avec paire photo-créeé :  $J_1$**

Un électron est passé par effet tunnel de la mer vers la boîte et la paire comporte une paire électron-trou,

$$E_{J_1} = E_F + 2E_{e,1}(U) + E_{h,1}(U) + \delta_{eh} + \delta_{e-eh} + \Delta. \quad (4.2.6)$$

$\delta_{e-eh}$  est l'énergie d'interaction Coulombienne entre un électron et une paire électron-trou dans la boîte. Elle est représentée Figure 1.12 en fonction de la taille du confinement et dans le cas de barrières infinies.

**État à deux électrons avec paire photo-créeé :  $J_2$**

Deux électrons sont passés par effet tunnel de la mer vers la boîte qui comporte en plus une paire électron-trou photo-créeés. Le principe de Pauli imposant qu'un des électrons doit être placé dans le deuxième niveau de la bande de conduction, nous avons dans ce cas,

$$E_{J_2} = 2E_{e,1}(U) + E_{e,2}(U) + E_{h,1}(U) + \delta_{eh} + \delta_{e-eh} + \delta_{e-eeh} + 2\Delta. \quad (4.2.7)$$

où  $\delta_{e-eeh}$  est l'énergie d'interaction coulombienne entre un électron et un trio négatif dans la boîte.

#### 4.2.3.2 Définition des seuils

Les tensions seuils apparaissant sur les Figures 4.4 (a) et 4.1 sont définies de la manière suivante. Les seuils  $U_1$  et  $U_2$  (respectivement  $U'_1$  et  $U'_2$ ) correspondent aux tensions pour lesquelles un et deux électrons passent par effet tunnel dans la boîte sans paire électron-trou photo-créeé (respectivement

avec une paire électron-trou photo-crée). Ces tensions sont donc définies comme

$$E_{I_0}(U1) = E_{I_1}(U1), \quad (4.2.8a)$$

$$E_{I_1}(U2) = E_{I_2}(U2), \quad (4.2.8b)$$

$$E_{J_0}(U'1) = E_{J_1}(U'1), \quad (4.2.8c)$$

$$E_{J_1}(U'2) = E_{J_2}(U'2), \quad (4.2.8d)$$

et nous obtenons leurs expressions en fonction des différents paramètres du problème,

$$U_1 = V_{\text{BI}} + \frac{1}{\alpha q} (\varepsilon_{e,1} + \Delta - E_c), \quad (4.2.9a)$$

$$U_2 = V_{\text{BI}} + \frac{1}{\alpha q} (\varepsilon_{e,1} + \delta_{ee} + \Delta - E_c), \quad (4.2.9b)$$

$$U'_1 = V_{\text{BI}} + \frac{1}{\alpha q} (\varepsilon_{e,1} + \delta_{e-eh} + \Delta - E_c), \quad (4.2.9c)$$

$$U'_2 = V_{\text{BI}} + \frac{1}{\alpha q} (\varepsilon_{e,2} + \delta_{e-eeh} + \Delta - E_c). \quad (4.2.9d)$$

Nous en déduisons que les seuils  $U_1$  et  $U'_1$  ainsi que  $U_2$  et  $U'_2$  sont décalés en tension et que

$$U'_1 - U_1 = \frac{\delta_{e-eh}}{\alpha q} \quad (4.2.10a)$$

$$U'_2 - U_2 = \frac{1}{\alpha q} (\varepsilon_{e,2} - \varepsilon_{e,1} + \delta_{e-eeh} - \delta_{ee}) \quad (4.2.10b)$$

Nous avons vu (Figure 1.12) que dans le cas de barrières infinies,  $\delta_{e-eh}$  est négatif, ce qui entraînerait que  $U'_1 < U_1$ . En réalité, les barrières de potentiel ne sont pas infinies et les fonctions d'onde de l'électron et du trou ne sont pas délocalisées de la même manière. Cela est dû au fait que les masses effectives des porteurs et le potentiel de confinement des bandes de valence et de conduction ne sont pas identiques. Deux situations distinctes peuvent alors se présenter :

- si l'électron est plus délocalisé que le trou, la boîte est globalement chargée positivement, ce qui correspond à  $\delta_{e-eh} < 0$ . Un électron de la mer de Fermi tunnel alors plus facilement vers une boîte comportant une paire électron-trou que vers une BQ vide.
- si le trou est plus délocalisé que l'électron, la boîte est globalement chargée négativement, ce qui correspond à  $\delta_{e-eh} > 0$ . Un électron de la mer de Fermi tunnel alors plus facilement vers une boîte vide que vers une BQ comportant une paire électron-trou.

Dans les BQ InAs/GaAs usuelles, les trous sont généralement plus confinés que les électrons [141, 142, 143], ce qui entraîne  $\delta_{e-eh} < 0$  et donc  $U'_1 < U_1$  comme représenté Figure 4.5 (a). Nous pouvons remarquer que ce résultat est cohérent avec le fait que la transition  $X^-$  se fait à plus basse énergie que celle de  $X^0$ , puisque  $\delta_{e-eh}$  correspond à l'énergie de liaison du trio, qui est négative et vaut quelques meV, comme mesuré aussi par de nombreux groupes [71, 72, 107, 144, 145]. En effet, en appelant  $E_{X^0} = E_{J_0} - E_{I_0}$ ,  $E_{X^-} = E_{J_1} - E_{I_1}$  et  $E_{X^{2-}} = E_{J_2} - E_{I_2}$  les énergies des transitions associées à la recombinaison radiative des états  $X^0$ ,  $X^-$  et  $X^{2-}$ , nous montrons que

$$E_{X^-} - E_{X^0} = \delta_{e-eh}, \quad (4.2.11a)$$

$$E_{X^{2-}} - E_{X^-} = \varepsilon_{e,2} - \varepsilon_{e,1} + \delta_{e-eeh} - \delta_{ee}. \quad (4.2.11b)$$

En ce qui concerne les seuils  $U_2$  et  $U'_2$ , nous venons de montrer (voir Eq. (4.2.10b) et Eq. (4.2.11b)) que la différence  $U'_2 - U_2$  est du même signe que  $(E_{X^{2-}} - E_{X^-})$ . Dans les boîtes InAs/GaAs, cette quantité a été mesurée négative et valant plusieurs centaines de  $\mu\text{eV}$  [71, 72, 144, 146]. Cette situation correspond à celle illustrée Figure 4.5 (a).

### 4.2.3.3 Interprétation des résultats expérimentaux

Dans le cas d'une excitation résonante, la luminescence ne peut être observée que lorsque l'énergie du laser d'excitation correspond exactement à l'énergie de la transition adressée. Dans notre cas, cela signifie que la luminescence résonante de la raie  $X^-$  ne peut être observée qu'entre les seuils  $U_1$  et  $U'_2$  (Figure 4.4 (a)). Cette interprétation est cohérente avec la carte 2D obtenue sous excitation non-résonante à faible puissance, donnée Figure 4.6 (a) où nous observons une exaltation de la luminescence entre les seuils  $U_1$  et  $U'_2$ . Nous pouvons de plus remarquer que l'intensité reste faible sur une plus grande plage de tension proche du seuil  $U'_2$ , aussi bien pour l'excitation résonante que non-résonante, indiquant que les seuils  $U_1$  et  $U'_2$  ne sont pas de même nature. En effet,  $U'_2$  correspond à un seuil en présence d'une paire électron-trou photo-crée dans la BQ, ce qui n'est pas le cas du seuil  $U_1$ . En se souvenant que dans l'état  $J_2$  la BQ possède un électron dans le deuxième niveau de la bande de conduction, nous en déduisons que sa fonction d'onde est plus délocalisée que celles des autres états. Cela signifie que la BQ interagit d'avantage avec la mer de Fermi lorsque  $U$  est proche de  $U'_2$  que lorsque la tension est proche de  $U_1$ . Cette interprétation est confirmée par la mesure des fluctuations relatives d'intensité (avec un temps d'acquisition de 0.1 s) de la luminescence sous excitation non-résonante en fonction de la tension (voir Figure 4.6 (b)), où nous observons une augmentation nette des fluctuations proche du seuil  $U'_2$ . Cela signifie que dans cette région, la luminescence peut être inhibée si un électron passe par effet tunnel vers la mer de Fermi une fois la paire photo-crée.

La Figure 4.6 (c) présente en échelle semi-log des mesures des fluctuations relatives d'intensité pour une tension de  $-2.8\text{V}$  et en fonction du temps d'acquisition. Nous constatons que ces fluctuations augmentent quand le temps d'acquisition diminue. Cela semble indiquer que le temps caractéristique de l'extinction de la luminescence non-résonante est inférieur à 0.1 s sans en être trop éloigné, car sinon nous n'observerions pas de fluctuations de l'intensité. Malheureusement, la limite de résolution temporelle de la caméra CCD ne nous a pas permis de poursuivre ces mesures pour des temps d'acquisition inférieurs et ainsi déterminer précisément le temps caractéristique d'extinction de la luminescence. Enfin, précisons que dans le cas d'une excitation non-résonante, il n'est pas surprenant d'observer de la luminescence au delà des seuils de l'excitation résonante (voir Figure 4.1 et 4.6 (a)) puisque de nombreux porteurs électrons ou trous peuvent être injectés dans la boîte et se recombinent pour différentes configurations électroniques.

Le seuil  $U'_1$ , visible sur la Figure (4.1), correspond à l'apparition de la luminescence des états  $X^0$  et  $2X^0$ . Nous avons essayé de réaliser une excitation résonante sur la raie  $X^0$  mais sans succès, possiblement à cause du fort courant traversant l'échantillon pour les tensions nécessaires à l'apparition de la raie  $X^0$ . En théorie, l'excitation résonante de  $X^0$  devrait être possible pour des tensions plus petites que  $U'_1$  comme l'on récemment mis en évidence Kurzmann *et al* [107] dans un dispositif où le bras de levier de la structure est plus important. Étonnamment, nous observons

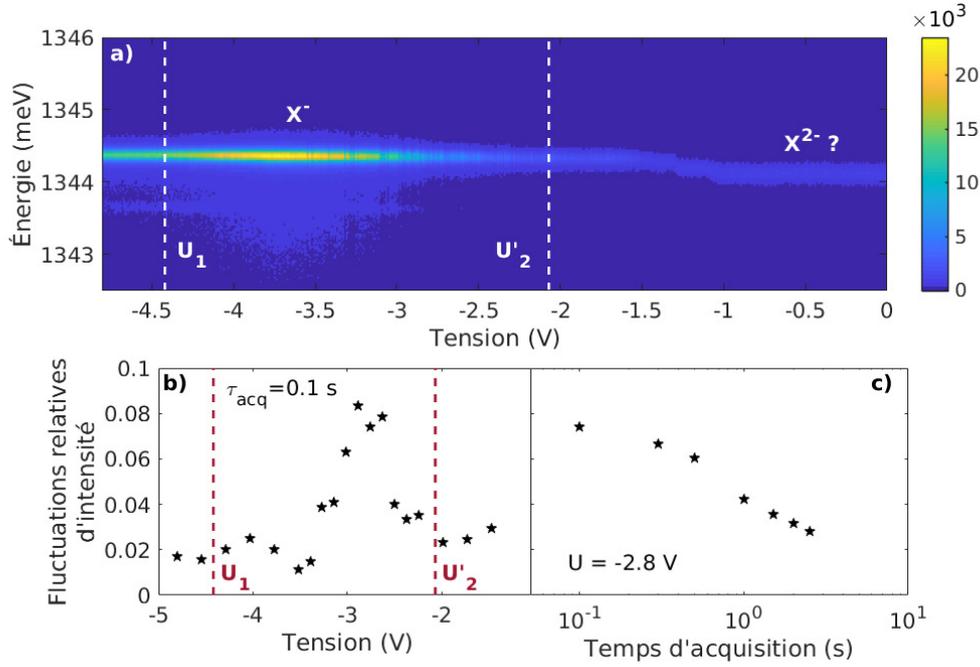


FIGURE 4.6 – (a) Spectre d'émission sous excitation non résonante et à faible puissance en fonction de la tension appliquée. Nous observons une exaltation de la luminescence entre les seuils  $U_1$  et  $U'_2$ . (b) Mesure des fluctuations relatives d'intensité en fonction de la tension confirmant que la nature des seuils  $U_1$  et  $U'_2$  n'est pas la même. (c) Mesure des fluctuations relatives d'intensité en fonction du temps d'acquisition mettant en évidence que le temps caractéristique des fluctuations d'intensité est inférieur à 0.1 s.

Figure 4.1 un regain de la luminescence de  $X^-$ , accompagné d'un décalage vers les basses énergies pour des tensions inférieures à  $U'_1$  et nous n'avons à ce jour pas d'explication pour ce phénomène.

Les équations (4.2.10a) et (4.2.11a) donnent  $E_{X^0} - E_{X^-} = \alpha q(U_1 - U'_1)$  ce qui signifie que nous pouvons mesurer de deux manières distinctes la différence d'énergie ( $E_{X^0} - E_{X^-}$ ) correspondant à l'énergie de liaison de  $X^-$ . La première se fait directement, en mesurant l'écart en énergie des deux raies sur la Figure 4.1 et donne  $E_{X^0} - E_{X^-} = 7$  meV. La deuxième, en utilisant les valeurs de  $U_1$ ,  $U'_1$  et du bras de levier de la structure, donne  $\alpha q(U_1 - U'_1) = 21$  meV. L'écart entre ces deux résultats est probablement dû au fait que dans la gamme de tension entre  $U_1$  et  $U'_1$ , le courant est grand avec pour conséquence un champ appliqué au niveau du plan de boîtes qui ne varie plus linéairement avec la tension [147].

Finalement, au vu des écarts énergétiques entre les raies  $X^-$  et  $X^{2-}$  mesurés dans la littérature (centaines de  $\mu\text{eV}$ ) [71, 72, 144, 146], nous pourrions nous attendre à ce que l'état noté  $X^{2-} ?$  sur la Figure 4.6 (a) corresponde au complexe doublement chargé négativement  $X^{2-}$ . Cependant, d'après les équations (4.2.10b) et (4.2.11b), un écart aussi faible en énergie devrait correspondre à un écart des deux seuils  $U_2$  et  $U'_2$  de 0.01 V ce qui n'est pas le cas (voir Figure 4.6 (a)). Nous observons un écart d'environ 0.7 V bien que le seuil ne soit pas très net et à ce jour nous n'avons pas d'explication satisfaisante à cette différence.

#### 4.2.4 Efficacité de l'émission

Dans le but de confirmer que le contrôle de l'état de charge permet à la BQ d'émettre systématiquement un photon, nous avons mesuré l'efficacité d'émission  $\eta$ , définie comme

$$\eta = \frac{N_{BQ}}{N_{las}}, \quad (4.2.12)$$

où  $N_{BQ}$  est le nombre de photons émis par seconde par une boîte et  $N_{las} = 82 \times 10^6$  est le nombre d'impulsions laser par seconde. Comme les boîtes émettent des photons uniques (voir Figure 4.4 (e)), nous avons nécessairement  $\eta \leq 1$ . Pour relier  $N_{BQ}$  à la quantité de photons  $N_{mes}$  détectés sur une APD en une seconde, nous écrivons

$$N_{mes} = \eta_{setup} \eta_{col} N_{BQ}, \quad (4.2.13)$$

où  $\eta_{col}$  est l'efficacité de collection de notre montage, c'est-à-dire la proportion de photons émis et collectés par l'objectif de détection, et  $\eta_{setup}$  l'efficacité de transmission du système expérimental défini comme le rapport du nombre de photons détectés sur une APD divisé par le nombre de photons en sortie du cryostat.

Nous avons mesuré  $\eta_{setup}$  en envoyant dans notre système expérimental un laser de puissance connue (à la même longueur d'onde que l'émission des BQ). En comptant le nombre de photons détectés sur une APD, nous évaluons l'efficacité de transmission à  $\eta_{setup} = (1.80 \pm 0.06) \times 10^{-3}$ . Bien que cette efficacité paraisse particulièrement faible, nous avons mesuré des valeurs similaires en utilisant les APD et la caméra CCD du spectromètre, la perte d'intensité principale ayant lieu entre la sortie de la fibre de collection de la luminescence et la détection.

Pour évaluer  $\eta_{col}$  nous avons envisagé de calculer le diagramme d'émission de la boîte à l'intérieur du guide unidimensionnel. En supposant que le guide est infini dans une direction et composé de miroirs parfaitement réfléchissants dans les deux directions de confinement, nous pouvons suivre la méthodologie de Brorson *et al* [148] et calculer de manière simple et exacte le diagramme d'émission. Cependant, l'approximation consistant à dire que les parois du guide sont des miroirs parfaitement réfléchissants certes simplifie fortement les calculs<sup>1</sup> mais est trop forte et il est nécessaire de prendre en compte une réflectivité finie pour les parois du guide. La résolution analytique de ce problème est possible dans le cas d'une cavité planaire ou d'un guide circulaire, mais pas pour un guide à section rectangulaire [149]. Pour obtenir une valeur approchée de  $\eta_{col}$ , nous considérons que la cavité n'a aucun effet sur le diagramme d'émission de la BQ, ce qui est évidemment une approximation puisque nous savons qu'elle force l'émission dans une direction orthogonale au guide d'onde. Par la suite, la structure guidée est uniquement prise en compte pour la propagation de la lumière après émission par la BQ.

Nous considérons que le dipôle de la BQ est orienté selon l'axe  $y$  comme représenté Figure 4.7 (a). Son diagramme d'émission est proportionnel à  $\sin^2 \theta$  où  $\theta$  est l'angle représenté sur la Figure 4.7 (b). Le diagramme d'émission de la Figure (a) possède en réalité une symétrie de rotation autour de l'axe  $y$  et nous appelons  $\varphi$  l'angle caractérisant cette rotation. Nous souhaitons connaître la proportion de luminescence collectée par l'objectif de détection placé au dessus du guide et, pour être précis,

---

1. Cette hypothèse permet de dire que les vecteurs d'onde sont quantifiés en  $2\pi/L$  où  $L$  est la dimension du guide dans la direction de confinement.

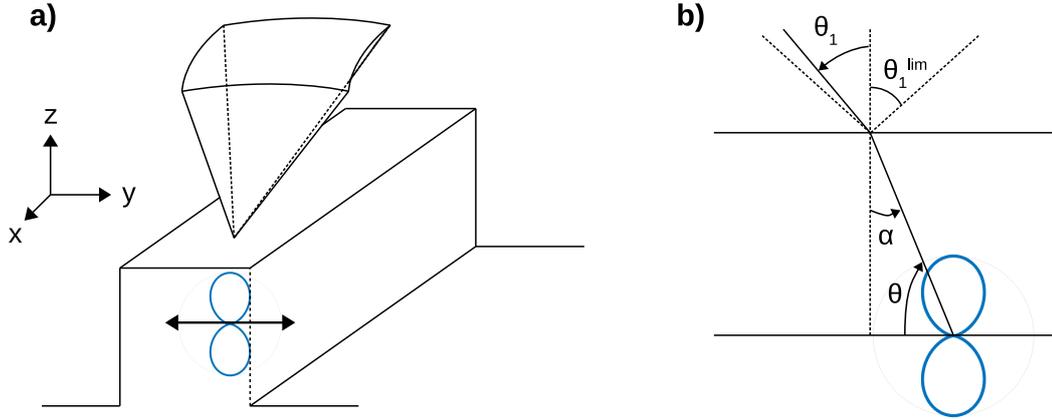


FIGURE 4.7 – (a) Diagramme d'émission d'une BQ sans prendre en compte le guide d'onde et angle solide de collection de l'objectif de microscope de détection. (b) Représentation des angles utiles pour le calcul de l'efficacité de collection.

nous devrions calculer la proportion de photons sortant dans le cône de demi-angle  $\theta_1^{lim}$  où  $\theta_1^{lim}$  est relié à l'ouverture numérique de l'objectif,  $AN = \sin \theta_1^{lim}$ . Cependant, pour des raisons de symétrie, il est difficile de calculer cette grandeur et nous allons calculer la proportion de photons émis dans l'angle solide représenté sur la Figure (a) défini tel que  $-\theta_1^{lim} \leq \theta_1 \leq \theta_1^{lim}$  et  $-\varphi_1^{lim} \leq \varphi_1 \leq \varphi_1^{lim}$  où  $\theta_1$  et  $\varphi_1$  sont les angles reliés à  $\theta$  et  $\varphi$  par les relations de Descartes  $n \sin \alpha = \sin \theta_1$  et  $n \sin \varphi = \sin \varphi_1$  avec  $n$  l'indice de GaAs qui constitue la cavité dans laquelle sont insérées les boîtes<sup>1</sup> et  $\alpha = \pi/2 - \theta$ . En définissant  $I_{tot}$  l'intensité totale émise par la BQ et  $I_{col}$  l'intensité collectée, nous avons

$$\begin{aligned} I_{tot} &= \int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} d\theta \sin^3 \theta \\ &= \frac{8\pi}{3}, \end{aligned} \quad (4.2.14)$$

$$\begin{aligned} I_{col} &= \int_{-\varphi_1^{lim}}^{\varphi_1^{lim}} d\varphi \int_{\frac{\pi}{2}-\alpha^{lim}}^{\frac{\pi}{2}+\alpha^{lim}} d\theta \sin^3 \theta \\ &= 4 \arcsin \left[ \frac{\sin \theta_1^{lim}}{n} \right] \left( \sin(\alpha^{lim}) - \frac{1}{3} \sin^3(\alpha^{lim}) \right), \end{aligned} \quad (4.2.15)$$

où  $\sin(\alpha^{lim}) = AN/n$  avec  $AN = 0.6$  et  $n = n_{GaAs} = 3.45$ . Comme mentionné précédemment, il est important de remarquer que la procédure utilisée ici ne prend pas en compte l'effet des miroirs de Bragg qui force l'émission de la luminescence dans la direction de collection. En comparant l'intensité de la luminescence émise pour des boîtes dans des structures avec et sans miroirs de Bragg que nous avons étudié, nous évaluons expérimentalement le gain à un facteur 10, de telle

1. Nous pouvons remarquer que la prise en compte d'une zone d'indice effectif  $n'$  pour tenir compte de la présence des miroirs de Bragg ne change pas le calcul puisque les lois de Descartes donnent alors  $n \sin \alpha = n' \sin \theta'$  et  $n' \sin \theta' = \sin \theta_1$ , ce qui entraîne bien  $n \sin \theta = n' \sin \theta'$ .

sorte que

$$\begin{aligned}
 \eta_{col} &= 10 \frac{I_{col}}{I_{tot}} \\
 &= \frac{30}{2\pi} \arcsin \left[ \frac{AN}{n} \right] \left( \frac{AN}{n} - \frac{1}{3} \left( \frac{AN}{n} \right)^3 \right), \\
 &\approx 0.14,
 \end{aligned} \tag{4.2.16}$$

ce qui signifie qu'environ 14 % des photons émis par la BQ sont collectés par l'objectif de détection.

La Figure 4.8 présente les valeurs de  $N_{mes}$  en échelle log pour les dix BQ étudiées (point noirs), ainsi que sa valeur moyenne (pointillé) et sa déviation standard (zone grisée). Nous constatons que la distribution en intensité est relativement constante ce qui signifie que toutes les BQ ont le même comportement. Les étoiles rouges sont les valeurs du nombre de photons réellement émis par la BQ, obtenus en prenant en compte l'efficacité de collection et de transmission de notre expérience. À nouveau, la ligne pointillé représente la valeur moyenne est la zone rosée la déviation standard. De plus, nous traçons en violet, le taux de répétition du laser et nous constatons que le nombre de photons émis par seconde par les BQ est très proche du nombre d'impulsions laser. Quantitativement, nous obtenons  $\eta = 0.9 \pm 0.6$  qui montre que l'ordre de grandeur de l'efficacité d'émission des BQ est proche de l'unité. Nous en déduisons qu'un photon est émis quasi-systématiquement par la BQ, ce qui est corroboré par le fait que le contrôle de l'état de charge d'une boîte, permet son excitation résonante systématique.

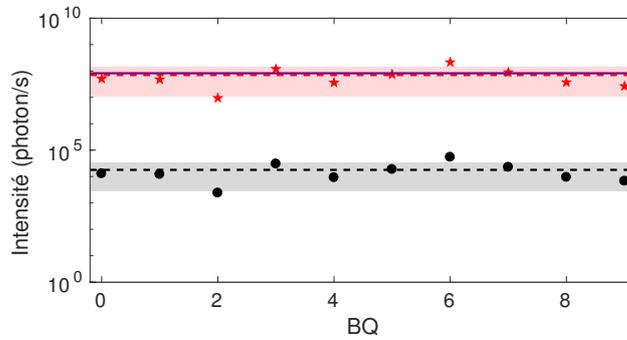


FIGURE 4.8 – (Noir) Nombre de photons mesurés par seconde sous excitation résonante pour les dix BQ étudiées. Le trait pointillé représente la valeur moyenne et la zone grisées la déviation standard. (Rouge) Nombre de photons émis par seconde par les BQ,  $N_{BQ}$ , obtenu en prenant en compte l'efficacité de collection des photons ainsi que celle de transmission du montage expérimental. Ici aussi le trait pointillé représente la valeur moyenne et la zone rosée la déviation standard. Le trait plein violet représente le nombre d'impulsions laser par seconde.

Afin d'évaluer plus précisément l'efficacité d'émission, il serait intéressant d'utiliser des simulations numériques (par exemple avec le logiciel MEEP) afin de calculer exactement le diagramme d'émission d'une BQ dans un guide unidimensionnel. De plus, il est primordial de comprendre la raison pour laquelle nous avons autant de perte dans le montage expérimental ce qui conduit à une valeur faible de  $\eta_{setup}$ , afin de maximiser le signal détecté.

### 4.3 Interaction avec la mer de Fermi

Dans cette partie, nous nous intéressons aux conséquences de l'interaction avec la mer de Fermi sur les propriétés d'émission de la luminescence résonante de l'état  $X^-$ . Bien que ces résultats très récents, n'aient pas été totalement compris à l'heure actuelle, il est intéressant de les présenter et de les discuter qualitativement afin d'envisager des pistes pour une analyse quantitative ultérieure.

#### 4.3.1 Influence de la température sur l'émission de la luminescence résonante

Nous avons réalisé des mesures du spectre d'émission sous excitation résonante en fonction de la tension appliquée, pour différentes températures. Ces mesures nous permettent en fait de sonder la distribution de Fermi-Dirac  $n_F(\varepsilon) = (e^{\beta(\varepsilon - \varepsilon_F)} + 1)^{-1}$  qui contrôle la distribution des porteurs de la mer en fonction de leur énergie. Nous présentons Figure 4.9 l'intensité intégrée (a) et la largeur à mi-hauteur (b) de la raie de luminescence en fonction de la tension appliquée et de la température.

L'intensité de la luminescence de la raie  $X^-$  est contrôlée par le passage par effet tunnel d'un électron entre la mer de Fermi et la boîte comme schématisé Figure 4.9 (c). Nous avons vu dans la partie 4.2.3 qu'à température nulle, la luminescence résonante de  $X^-$  n'est observable que si  $U < U'_2$ . En effet, si  $U > U'_2$ , un électron tunnel de la mer de Fermi vers la boîte (voir Figure 4.9 (d)) entraînant le passage de l'état  $J_1$  à  $J_2$ . A basse température, la distribution de Fermi-Dirac est proche d'une marche d'escalier (courbe bleue Figure 4.9 (c)) et la variation de la luminescence est

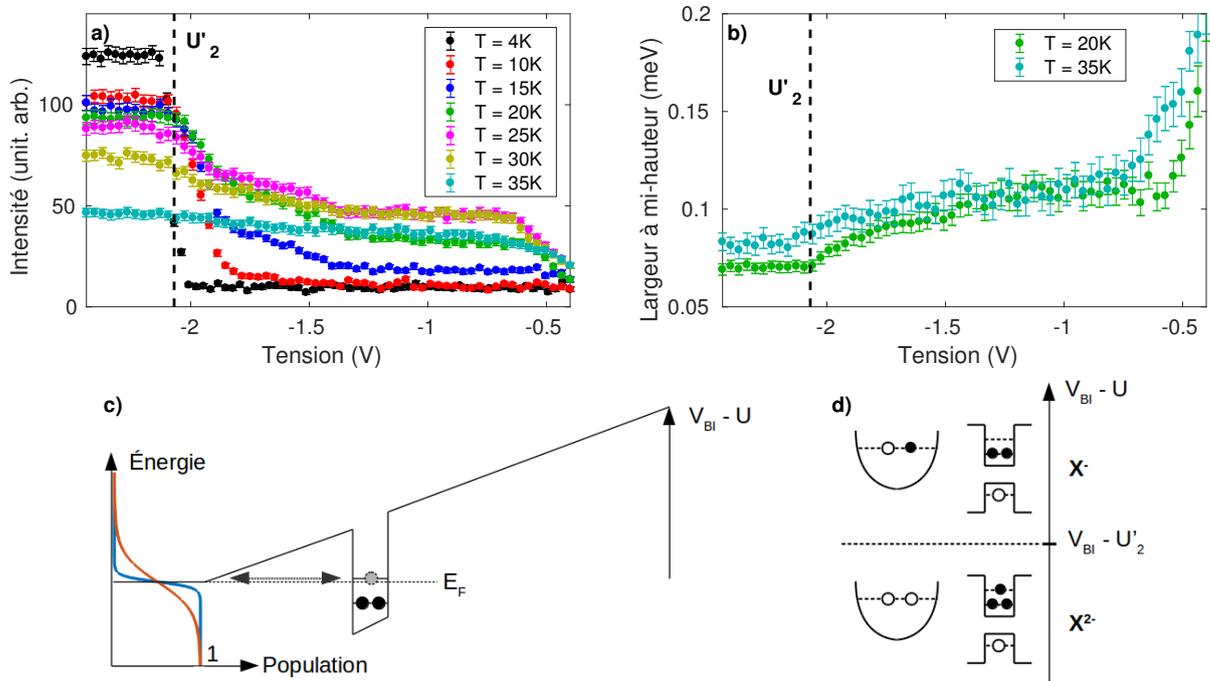


FIGURE 4.9 – Mesures du spectre d'émission de  $X^-$  sous excitation résonante de faible puissance en fonction de la tension appliquée et pour différentes températures. (a) Évolution de l'intensité intégrée. (b) Évolution de la largeur à mi-hauteur. (c) Schéma du passage par effet tunnel d'un électron de la boîte vers la mer de Fermi et vice-versa proche du seuil  $U'_2$ . (d) Schéma des deux états d'intérêt de part et d'autre du seuil  $U'_2$ .

abrupte, comme le montrent les résultats expérimentaux représentés en points noirs Figure 4.9 (a). En effet, en faisant varier la tension dans une faible gamme, nous alignons l'énergie du deuxième état confiné de conduction soit avec des états pleins ( $n_F$  proche de 1), soit avec des états vides ( $n_F$  proche de 0) de la mer de Fermi. Dans le deuxième cas, l'électron du niveau  $n = 2$  peut passer par effet tunnel de la boîte vers la mer de Fermi, permettant ainsi l'observation de la luminescence résonante de  $X^-$ . Plus la température augmente, plus la distribution de Fermi s'élargit autour du niveau de Fermi (trait rouge Figure 4.9 (c)), entraînant une variation moins abrupte de l'intensité émise par la BQ comme nous le constatons Figure 4.9 (a). De plus, les niveaux électroniques ayant une largeur finie, cela participe à l'élargissement du seuil.

De manière plus quantitative, nous mesurons pour  $T = 10$  K que l'intensité varie sur une gamme de tension de l'ordre de 0.1 V correspondant à une variation d'énergie des niveaux de la boîte d'environ 2.6 meV. Cette observation est cohérente avec le fait que la distribution de Fermi varie appréciablement sur une largeur  $k_B T$  valant 1 meV à 10 K. À plus haute température, nous observons l'apparition d'un épaulement pour les plus hautes tensions, ainsi que la présence d'un plateau où l'intensité reste constante avant de chuter autour de  $U \sim 0.5$ . La présence de ce plateau, qui ne peut être expliqué avec la description précédente, est à ce jour mal comprise. Remarquons pour finir, que la valeur limite de l'intensité pour les hautes tensions et à  $T = 4$  K ( $I \sim 10$ ), est en réalité la proportion de laser collecté par l'objectif de détection.

L'évolution des largeurs à mi-hauteur confirme notre interprétation pour les basses températures. En effet, à 4 K lorsque  $U > U'_2$ , la raie de luminescence n'existe pas. Lorsque  $U$  devient plus petite que  $U'_2$ , la luminescence de  $X^-$  apparaît et la largeur à mi-hauteur de la raie est donnée par la limite de résolution du spectromètre. Pour les plus hautes températures (voir Figure 4.9 (b)), lorsque la tension est comprise entre  $-0.6$  V et  $-1.4$  V, la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 0.1 meV puis chute en même temps que l'intensité augmente (sauf pour  $T = 35$  K où l'intensité est quasi-constante avec la tension). Ces résultats pourraient être dus au fait que pour  $U$  compris entre  $-1.8$  V et  $-0.75$  V, le trio  $X^-$  interagit fortement avec la mer de Fermi (via le passage par effet tunnel d'un porteur) ce qui entraîne un élargissement de la raie de luminescence.

### 4.3.2 Évolution du temps de cohérence

Nous avons mesuré le temps de cohérence des photons émis par STF pour différentes tensions appliquées sur l'échantillon. Le contraste d'interférence est ajusté par un profil pseudo-Voigt (voir Eq. (3.2.4)) nous permettant d'extraire le temps de cohérence  $T_2$  des photons émis (mesuré sur un temps caractéristique de l'ordre de la seconde), ainsi que la contribution inhomogène  $\eta$  associée à la diffusion spectrale due aux fluctuations de l'environnement électrostatique. Nous présentons Figure 4.10 les mesures de  $T_2$  (a) et de  $\eta$  (b).

Nous constatons que près du seuil  $U'_2$ , le temps de cohérence tend vers zéro et lorsque la tension diminue, il atteint rapidement une valeur limite telle que  $T_2 \lesssim T_1$ . Contrairement à ce que nous aurions pu attendre,  $T_2$  ne chute pas lorsque la tension se rapproche du seuil  $U_1$ . Nous interprétons cette évolution du temps de cohérence en considérant à nouveau le couplage à la mer de Fermi. Au voisinage du seuil  $U'_2$  l'interaction entre la mer de Fermi et le deuxième état confiné est important, comme nous venons de le voir dans la partie précédente. Entre les seuils  $U_1$  et  $U'_2$ , la tension est

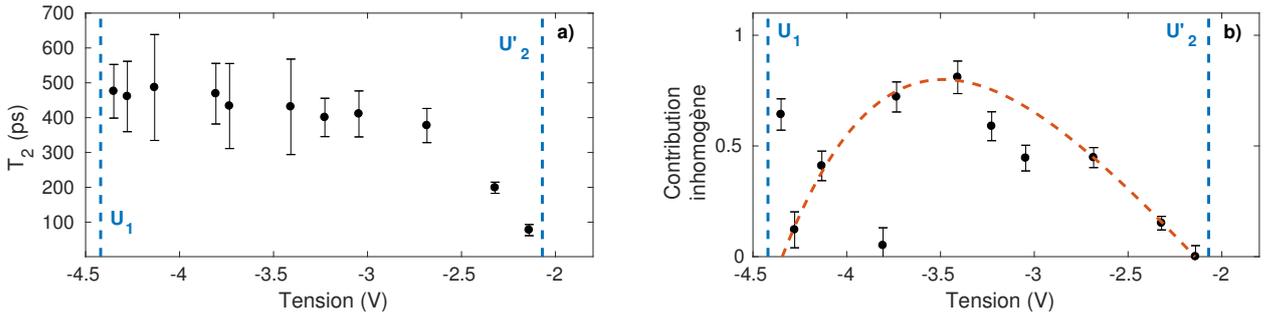


FIGURE 4.10 – (a) Temps de cohérence mesuré par STF. (b) Contribution inhomogène du profil pseudo-Voigt (voir Eq. (3.2.4)) permettant d’ajuster le contraste d’interférence. La ligne en pointillés rouge n’est qu’un guide pour les yeux.

telle qu’aucun processus tunnel ne peut avoir lieu, entraînant une diminution des processus de décohérence et donc une augmentation de  $T_2$ . Près du seuil  $U_1$ , c’est le premier niveau confiné de la boîte sans paire électron-trou qui interagit avec la mer de Fermi (voir Figure 4.5). Nous pouvons remarquer que du côté du seuil  $U'_2$ , la variation de  $T_2$  se fait sur une échelle comparable aux variations d’intensité de la Figure 4.4, ce qui est en accord avec le fait que le couplage à la mer de Fermi contrôle l’évolution du temps de cohérence. En remarquant que la perte de la luminescence résonante près du seuil  $U_1$  se fait sur une gamme de tension très faible, nous pouvons en conclure que le temps de cohérence chute probablement sur une échelle de tension similaire, ce qui explique l’allure de l’évolution de  $T_2$  avec la tension. Nous en concluons donc que la nature différente des seuils  $U_1$  et  $U'_2$  a probablement deux origines : près de  $U'_2$ , c’est l’état excité (avec paire électron-trou photo-créée) de la BQ qui interagit via le deuxième niveau confiné avec la mer de Fermi, alors que près de  $U_1$ , c’est l’état fondamental de la BQ (sans paire photo-créée) qui interagit via le premier niveau confiné avec la mer de Fermi. Ainsi, il n’est pas surprenant d’observer des phénomènes différents au voisinage de ces deux seuils, comme l’on par ailleurs mis en évidence Kurzmann *et al* [107].

Les mesures de la contribution inhomogène nous permettent de compléter cette analyse (voir Figure 4.10 (b)). Entre les seuils  $U_1$  et  $U'_2$  la BQ n’interagit pas avec la mer de Fermi mais est soumise aux processus de diffusion spectrale ou d’interaction avec les spins nucléaires comme dans les échantillons non contactés. Ces processus de décohérence entraînent un élargissement inhomogène de la raie de luminescence (voir partie 3.2.2) et donc une augmentation de  $\eta$ . Cette interprétation explique de plus que le temps de cohérence reste loin de la limite radiative  $T_2 = 2T_1$ , comme cela a aussi été observé récemment [150]. Proche des seuils, la contribution inhomogène chute, ce qui est cohérent avec le fait que les niveaux électroniques discrets de la BQ interagissent avec le continuum d’états de la mer de Fermi<sup>1</sup>. Nous constatons également une variation plus rapide du côté du seuil  $U'_2$  que de  $U_1$  en accord avec la discussion précédente. Nous en concluons qu’à proximité des seuils, l’élargissement de la raie dû à l’interaction avec la mer de Fermi, domine celui dû à la diffusion spectrale. Une autre conclusion que nous pouvons tirer, est que l’application d’une tension de grille n’empêche pas les fluctuations de l’environnement électrostatique bien que contrôlant l’état de charge de la BQ.

1. Le couplage d’un état discret avec un continuum entraîne un élargissement homogène de la raie d’émission [151].

### 4.3.3 Piste pour une interprétation quantitative

#### 4.3.3.1 Idée générale

Afin d'interpréter de manière plus quantitative les variations d'intensité de la luminescence ainsi que l'évolution du temps de cohérence, c'est-à-dire de la largeur de raie, il est envisageable d'utiliser un formalisme similaire à ceux développés dans les références [143, 72, 145, 152, 153], où les auteurs considèrent l'hybridation des états de la BQ avec le continuum d'états de la mer de Fermi.

Il s'agit de calculer l'intensité émise en utilisant la règle d'or de Fermi

$$I(\omega) = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f \left| \langle f | \hat{H}_{LM} | i \rangle \right|^2 \delta(\hbar\omega + E_f - E_i), \quad (4.3.1)$$

lorsque le système passe d'un état initial  $|i\rangle$  comportant une paire électron-trou à un état final  $|f\rangle$  sans paire électron-trou, en émettant un photon d'énergie  $\hbar\omega$ . Ces états  $|i\rangle$  et  $|f\rangle$  sont les états propres du hamiltonien d'Anderson [154] qui a la forme

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}_t + \hat{V}_{Coul}, \quad (4.3.2)$$

avec

$$\hat{H}_0 = \sum_{i,s} E_{e,i} \hat{d}_{i,s}^\dagger \hat{d}_{i,s} + E_h \hat{b}^\dagger \hat{b} + \sum_{\mathbf{k},s} \varepsilon_{\mathbf{k}} \hat{c}_{\mathbf{k},s}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k},s}, \quad (4.3.3a)$$

$$\hat{V}_t = \sum_{i,\mathbf{k},s} V_{\mathbf{k}} \hat{d}_{i,s}^\dagger \hat{c}_{\mathbf{k},s} + \text{h.c.}, \quad (4.3.3b)$$

et où  $\hat{V}_{Coul}$  décrit l'interaction coulombienne entre les porteurs se trouvant dans la boîte [143]. Dans l'équation (4.3.3a), le premier terme correspond à l'énergie des électrons dans la bande de conduction, l'opérateur  $\hat{d}_{i,s}$  détruisant un électron de spin  $s$  dans le niveau d'énergie  $i$  de la bande de conduction. Le deuxième terme correspond à l'énergie des trous dans la bande de valence (nous ne considérons que l'état de trou lourd de plus basse énergie), l'opérateur  $\hat{b}$  détruisant un trou dans la bande valence. Enfin, le troisième terme correspond à l'énergie des électrons de la mer de Fermi, l'opérateur  $\hat{c}_{\mathbf{k},s}$  détruisant un électron de spin  $s$  et de moment  $\mathbf{k}$ .

Afin d'adapter le modèle à notre système, nous pouvons nous contenter de prendre  $i \in \{1, 2\}$  puisque nous ne nous intéressons qu'aux deux états de plus basse énergie de la bande de conduction. Le terme *tunnel*  $\hat{V}_t$  dont l'expression est donnée Eq. (4.3.3b), correspond comme son nom l'indique, au passage par effet tunnel d'un électron de la BQ vers la mer de Fermi et vice-versa. Le paramètre  $V_{\mathbf{k}}$  caractérise la force du couplage tunnel et est relié au recouvrement des fonctions d'onde des états électroniques de la mer de Fermi et de ceux de la BQ. Nous constatons que ce terme *tunnel* rend le traitement du problème compliqué puisqu'il a pour conséquence de changer les états propres de  $\hat{H}$ . Finalement, afin de simplifier le problème pour se concentrer sur l'hybridation des états de la boîte par la mer de Fermi, nous négligerons le terme d'interaction coulombienne dans la suite.

Dans l'expression de l'intensité Eq. (4.3.1),  $\hat{H}_{LM}$  est le hamiltonien d'interaction lumière matière qui décrit la création (destruction) d'une paire électron-trou par absorption (émission) d'un photon. En considérant que seules les paires électron-trou dans l'état de plus basse énergie se recombinent radiativement, il s'écrit [152, 143]

$$\hat{H}_{LM} = A \sum_s \left( \hat{d}_{1,s} \hat{b} + \hat{d}_{1,s}^\dagger \hat{b}^\dagger \right), \quad (4.3.4)$$

où  $A$  est une constante. Remarquons que nous ne prenons pas en compte les photons dans cet hamiltonien, de manière à se concentrer sur les excitations électroniques. Nous pouvons sans difficulté ajouter un opérateur création (destruction) de photon dans le premier (deuxième) terme de  $\hat{H}_{\text{LM}}$  et poser que l'état final apparaissant dans la règle d'or de Fermi comporte un photon, ce qui conduit au même résultat.

### 4.3.3.2 Réécriture de l'intensité

Nous allons ici réécrire l'intensité donnée Eq. (4.3.1) sous une forme plus pratique à calculer. En utilisant le fait que

$$\lim_{\Delta \rightarrow 0} \left( \frac{1}{\omega + i\Delta} \right) = \mathcal{P} \left( \frac{1}{\omega} \right) - i\pi\delta(\omega), \quad (4.3.5)$$

nous obtenons

$$I(\omega) = -\frac{2}{\hbar} \lim_{\Delta \rightarrow 0} \text{Im} \left[ \sum_f \left| \langle f | \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle \right|^2 \frac{1}{\hbar\omega + E_f - E_i + i\Delta} \right]. \quad (4.3.6)$$

Si nous souhaitons prendre en compte une largeur de raie homogène finie  $\Gamma$ , nous avons [145],

$$I(\omega) = -\frac{2}{\hbar} \text{Im} [J(\omega)] \quad \text{avec} \quad J(\omega) = \sum_f \left| \langle f | \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle \right|^2 \frac{1}{\hbar\omega + E_f - E_i + i\frac{\Gamma}{2}}. \quad (4.3.7)$$

En utilisant le fait que  $|f\rangle$  est un état propre de  $\hat{H}$  pour la valeur propre  $E_f$ , nous avons pour tout  $z \in \mathbb{C}$ ,  $[\hat{H} - z]^{-1}|f\rangle = (E_f - z)^{-1}|f\rangle$ , ce qui entraîne en posant  $z(\omega) = E_i - \hbar\omega - i\Gamma/2$ ,

$$\begin{aligned} J(\omega) &= \sum_f \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{E_f - z(\omega)} | f \rangle \langle f | \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle \\ &= \sum_f \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{\hat{H} - z(\omega)} | f \rangle \langle f | \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle \\ &= \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{\hat{H} - z(\omega)} \sum_f | f \rangle \langle f | \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle \\ &= \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{\hat{H} - z(\omega)} \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle, \end{aligned} \quad (4.3.8)$$

où la dernière égalité a été obtenue en utilisant la relation de fermeture. En remarquant de plus qu'à l'ordre un en  $\hat{V}_t$

$$\frac{1}{\hat{H} - z(\omega)} \approx \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)} - \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)} \hat{V}_t \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)}, \quad (4.3.9)$$

nous obtenons  $J(\omega) = J_0(\omega) + J_1(\omega)$  avec

$$J_1(\omega) = \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)} \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle, \quad (4.3.10a)$$

$$J_2(\omega) = \langle i | \hat{H}_{\text{LM}} \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)} \hat{V}_t \frac{1}{\hat{H}_0 - z(\omega)} \hat{H}_{\text{LM}} | i \rangle. \quad (4.3.10b)$$

Nous constatons que la réécriture ci-dessus permet de faire disparaître la somme sur les états finaux, ce qui simplifie le calcul.

### 4.3.3.3 États propres du Hamiltonien d'Anderson

Nous venons de voir que l'intensité émise par une BQ couplée à une mer de Fermi par effet tunnel, est de la forme  $I(\omega) = -2\text{Im}[J_1(\omega) + J_2(\omega)]/\hbar$  où  $J_1(\omega)$  et  $J_2(\omega)$  sont donnés par les équations (4.3.10). La question est donc maintenant d'exprimer l'état propre  $|i\rangle$  en fonction des différents paramètres du problème, c'est à dire de diagonaliser  $H$ .

Intéressons nous par exemple à la luminescence émise lorsque  $U < U'_2$ . Dans ce cas, nous avons vu que le système est dans une superposition d'états schématisée Figure 4.9 (c),  $X^-$  et  $X^{2-}$  où la transition d'un état à l'autre se fait par le passage d'un électron par effet tunnel entre la BQ et la mer de Fermi. Cet état s'écrit

$$|i\rangle = \hat{d}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{d}_{1,\downarrow}^\dagger \hat{b}^\dagger \left( \sum_s \gamma \hat{d}_{2,s}^\dagger + \sum_{\mathbf{k},s} \gamma_{\mathbf{k}} \hat{c}_{\mathbf{k},s}^\dagger \right) |0\rangle \quad \text{avec} \quad |\gamma|^2 + \sum_{\mathbf{k}} |\gamma_{\mathbf{k}}|^2 = 1. \quad (4.3.11)$$

En injectant l'expression de  $|i\rangle$  dans celle de  $J_1(\omega)$  donnée équation (4.3.10a), nous montrons que le terme d'ordre le plus bas en couplage tunnel est de la forme

$$J_1(\omega) = 4|A|^2 \left[ \frac{|\gamma|^2}{E_{e,1} + E_{e,1} + \hbar\omega - E_i + i\frac{\Gamma}{2}} + \sum_{\mathbf{k}} \frac{|\gamma_{\mathbf{k}}|^2}{E_{e,1} + \varepsilon_{\mathbf{k}} + \hbar\omega - E_i + i\frac{\Gamma}{2}} \right]. \quad (4.3.12)$$

Nous constatons que les paramètres inconnus du problème sont  $(\gamma, \{\gamma_{\mathbf{k}}\}, E_i)$ , c'est-à-dire l'état initial et son énergie. Nous pouvons vérifier que lorsque nous ne considérons pas d'hybridation, nous retrouvons une forme de raie lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $\Gamma$  et dont la position en énergie est identique pour les transitions  $X^-$  et  $X^{2-}$  puisque nous n'avons pas pris en compte l'interaction coulombienne.

Pour calculer l'intensité émise par la boîte, il est donc nécessaire de connaître l'état initial  $|i\rangle$  et pour ce faire nous envisageons deux stratégies :

1. diagonaliser le hamiltonien d'Anderson donné Eq. (4.3.2),
2. obtenir l'état initial en minimisant numériquement l'énergie qui s'écrit  $E_i = \langle i | \hat{H} | i \rangle$ .

La première de ces stratégies a l'intérêt de permettre la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu grâce à une résolution analytique, mais présente une difficulté technique certaine. La deuxième, permet de s'affranchir de la technicité du calcul mais nécessite des algorithmes de calcul performants et ne permet pas d'appréhender la physique entrant en jeu dans ce problème. Le développement de ces deux stratégies constitue une perspective intéressante de ce travail.

## 4.4 Quelques résultats sur l'apparition d'une deuxième raie de luminescence résonante

### 4.4.1 Observation de battements dans les expériences de spectroscopie par transformée de Fourier

Nous présentons ici quelques résultats intrigants que nous avons observés lors de l'étude des échantillons dopés. Il s'agit de l'existence de battements dans les mesures du temps de cohérence par STF comme présenté sur la Figure 4.11. Il s'agit de résultats observés sur trois boîtes parmi

les dix étudiées. Ces battements n'apparaissent que pour certaines valeurs de la tension appliquée et de la puissance, comme nous le discuterons par la suite. L'origine de ces battements ne peut s'expliquer que par l'existence de deux raies de luminescence dans le spectre d'émission résonante de la boîte, séparées d'un écart en énergie  $\Delta E$ , dont la valeur varie selon la BQ.

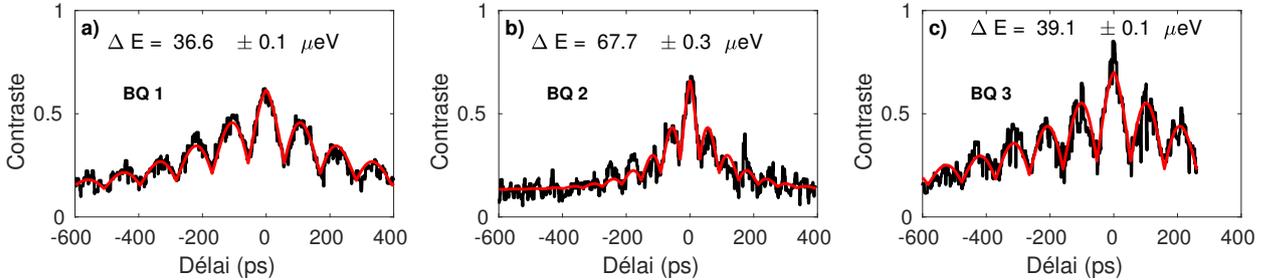


FIGURE 4.11 – Contrastes d'interférences bruts mettant en évidence l'existence de battements pour trois BQ distinctes (a), (b) et (c). Pour les trois boîtes, ces mesures ont été réalisées proche du seuil  $U_2'$ .

En plaçant une lame  $\lambda/2$  et un polariseur sur la chemin de collection de la luminescence, nous avons vérifié que ces battements ne sont pas dus à la présence de deux raies de polarisation rectiligne et orthogonales comme dans la partie 2.3.5 (voir Figure 2.19). De même, en plaçant une lame  $\lambda/4$  avant le polariseur, nous avons vérifié que les battements ne sont pas dus à la présence de deux raies polarisées circulairement et d'hélicité opposée. Nous avons aussi vérifié que la statistique d'émission reste sub-poissonienne, c'est-à-dire que la boîte émet bien des photons uniques, ce qui signifie que les photons émis sont associés à une transition ou à l'autre, mais jamais aux deux en même temps. Enfin, nous avons fait varier le décalage entre la longueur d'onde du laser et celle de la boîte sans que cela n'entraîne de modification de l'interférogramme.

Les courbes en rouge sur la Figure 4.11 sont le résultat d'un ajustement de la forme

$$C(t) = A e^{-\frac{|t|}{T_2}} \left[ 1 - \beta \left( 1 - \left| \cos \left( \frac{t}{T_{osc}} \right) \right| \right) \right], \quad (4.4.1)$$

similaire à celui utilisé dans la partie 2.3.5. Ici  $T_{osc}$  est la période d'oscillation, reliée à l'écart en énergie entre les deux raies par  $\Delta E(\mu eV) = 1320/T_{osc}(\text{ps})$ , et  $\beta$  est le contraste des oscillations. La forme (4.4.1) du contraste est uniquement phénoménologique et nous ne l'utilisons que pour extraire les valeurs de  $T_2$ ,  $\Delta E$  et  $\beta$ . Les valeurs de l'écart en énergie entre les deux raies sont de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu eV$  ce qui est inférieur à la résolution spectrale de notre spectromètre.

#### 4.4.2 Effet de la puissance d'excitation

Afin de comprendre l'origine de ces battements, nous avons réalisé des mesures de temps de cohérence en fonction de la puissance d'excitation. Nous avons remarqué que pour une tension donnée, les battements apparaissent lorsque la puissance dépasse la puissance correspondant à une impulsion  $\pi$ , comme le montre la Figure 4.12 dont les mesures ont été réalisées à une tension de  $-3\text{ V}$ .

Pour l'analyse des données, nous ajustons le contraste des interférences avec un profil pseudo-Voigt (voir Eq. (3.2.4)) lorsque nous n'observons pas de battements (de (b) à (f) Figure 4.12) et par

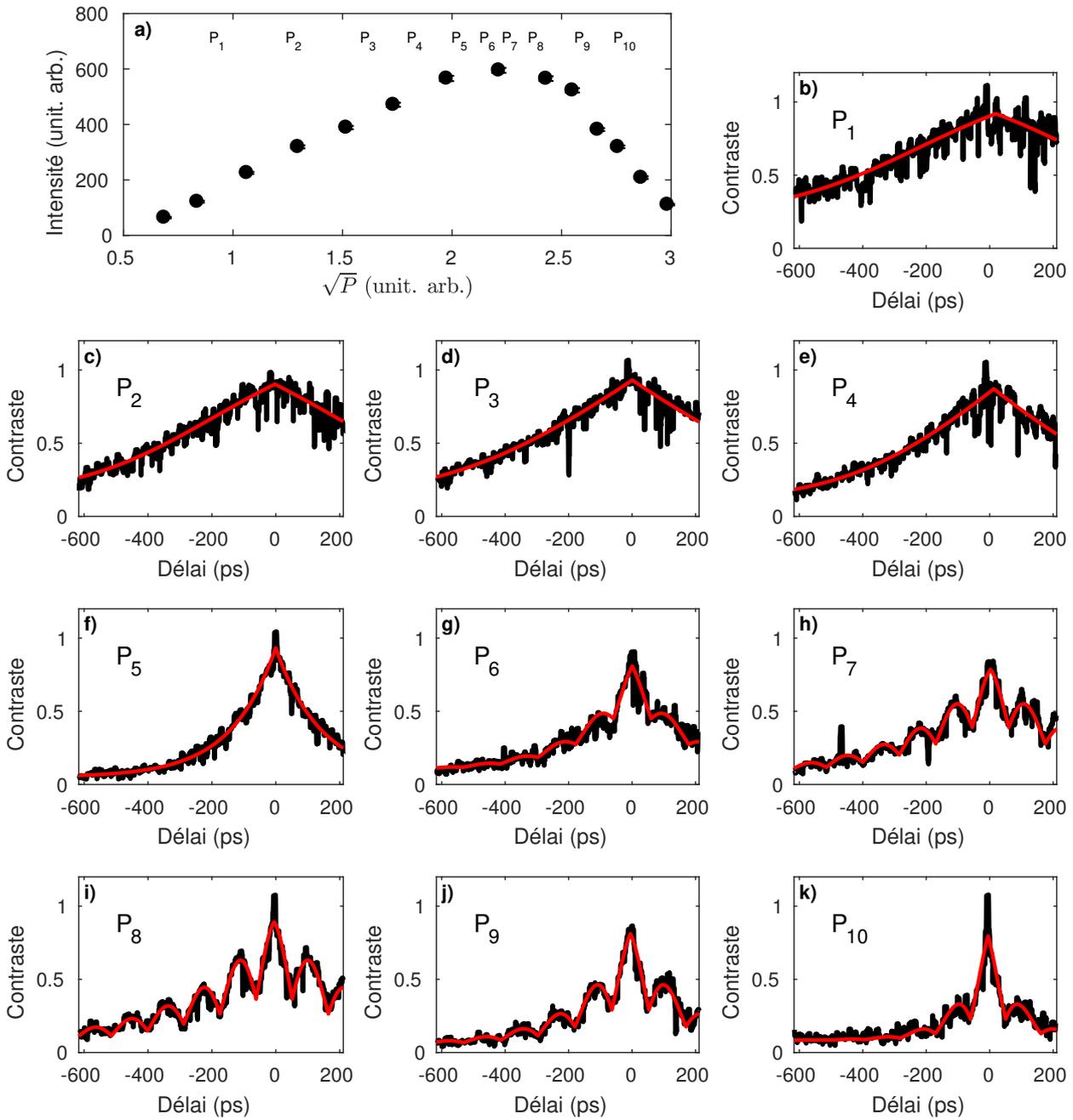


FIGURE 4.12 – Résultats obtenus sur la BQ 1 de la Figure 4.11. (a) Oscillation de Rabi pour  $U = -3V$ . Les puissances apparaissant sur la figure sont les puissances auxquelles ont été réalisées les expériences de STF présentées dans le reste de la figure. (b-k) Expériences de STF en fonction de la puissance d'excitation et à une tension de  $-3V$ .

l'expression (4.4.1) lorsque nous observons des battements. Afin d'avoir une vision d'ensemble des ces expériences, nous traçons Figure 4.13 les valeurs des temps de cohérence (a), de la contribution inhomogène (b) dans le cas où nous n'observons pas de battements (basse puissance), de l'écart en énergie entre les deux raies lorsque les battements sont visibles (c), ainsi que le contraste des oscillations (d) qui nous renseigne sur l'intensité relative des raies qui interfèrent.

Avant l'apparition des battements, nous constatons que le temps de cohérence chute lorsque la puissance augmente. La contribution inhomogène du profil pseudo-Voigt diminue aussi, ce qui laisse penser en se basant sur les résultats de la partie 4.3.2, que l'interaction entre la boîte la mer de Fermi augmente avec la puissance d'excitation. Une fois que les battements apparaissent, nous observons un regain du temps de cohérence puis une diminution. Nous remarquons de plus que l'écart en énergie entre les deux raies reste constant mais que le contraste des oscillations augmente, ce qui signifie que les intensités des deux pics deviennent de plus en plus similaires.

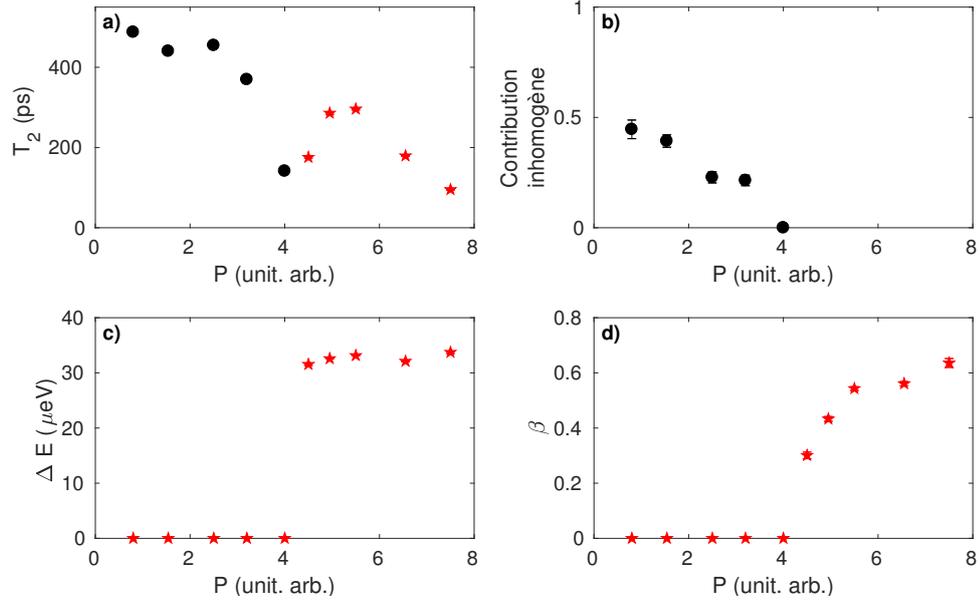


FIGURE 4.13 – Résumé des expériences de STF en fonction de la puissance d'excitation à une tension de  $-3\text{V}$ . Les ronds noirs correspondent aux données extraites des interférogrammes sans battements et les étoiles rouges de ceux avec oscillations. (a) Temps de cohérence. (b) Contribution inhomogène. (c) Écarts en énergie entre les deux raies responsables des battements. (d) Contraste des oscillations.

#### 4.4.3 Effet de la tension appliquée

Ayant constaté que les battements apparaissent pour des puissances supérieures à celle correspondant à une impulsion  $\pi$ , nous avons pour des puissances légèrement supérieures, réalisé des mesures de temps de cohérence en fonction de la tension appliquée. Ces résultats sont présentés Figure 4.14 de (a) à (f) et nous observons l'apparition de battements lorsque la tension se rapproche du seuil  $U'_2$ . Nous constatons que le temps de cohérence varie peu sur la gamme de tension étudiée (g) et nous précisons que la contribution inhomogène est inférieure à 0.05 lorsque nous n'observons pas de battements. D'après ce que nous avons vu dans ce qui précède, cela semble indiquer que le couplage avec la mer de Fermi est fort. L'écart en énergie entre les deux raies qui interfèrent (h) est identique à celui obtenu précédemment pour la même boîte et ne varie pas non plus avec la tension appliquée sur l'échantillon. Enfin, nous observons ici aussi une augmentation du contraste des oscillations lorsque  $U$  se rapproche du seuil  $U'_2$  ce qui signifie aussi que les intensités des deux raies de luminescence tendent à s'égaliser.

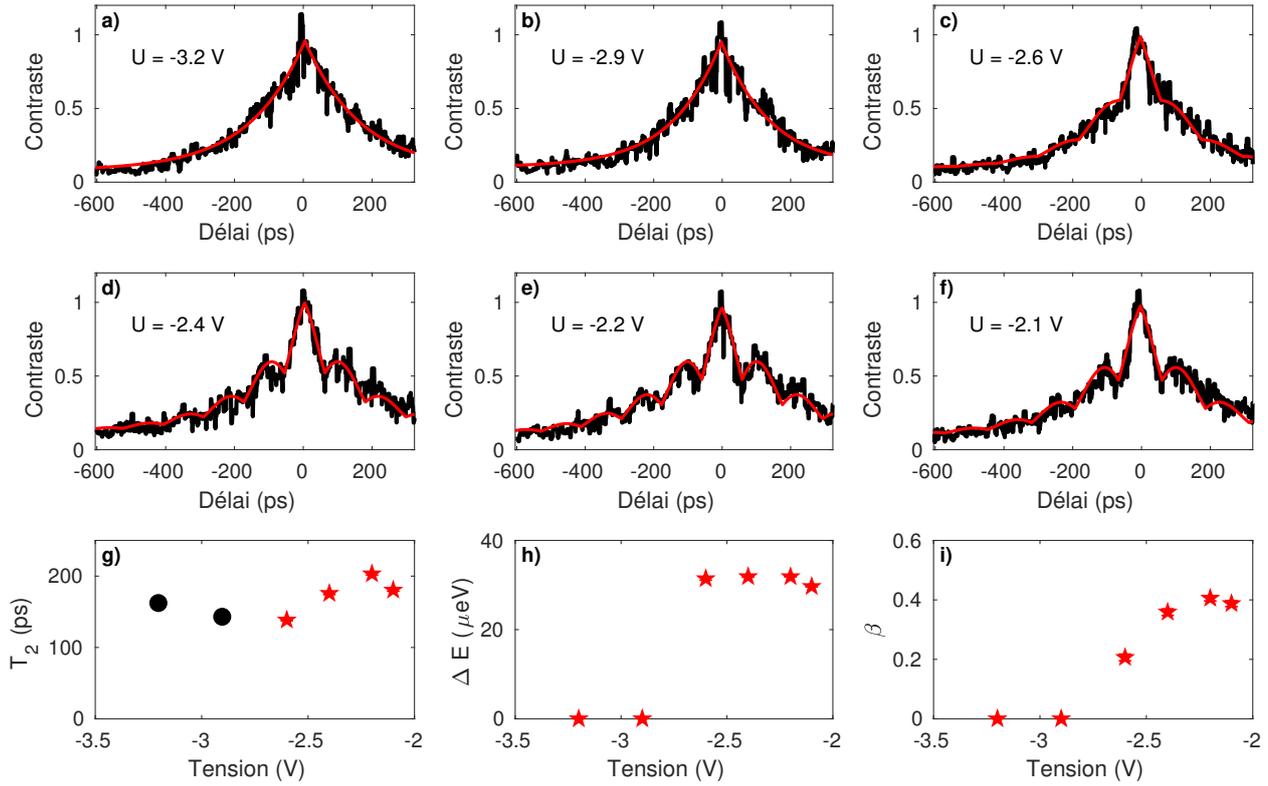


FIGURE 4.14 – (a-f) Expériences de STF en fonction de la tension appliquée pour une puissance d'excitation légèrement supérieures à celle d'une impulsion  $\pi$ , réalisées sur la même BQ que pour les Figures 4.12 et 4.13. (g) Temps de cohérence. (h) Écarte en énergie entre les deux raies responsables des battements. (i) Contraste des oscillations.

#### 4.4.4 Discussion

Les observations précédentes semblent indiquer que lorsque la puissance d'excitation augmente, ou lorsque la tension se rapproche du seuil  $U'_2$ , le couplage à la mer de Fermi devient dominant. Les mesures de STF nous permettent d'affirmer que le profil spectral de la luminescence évolue comme représenté sur la Figure 4.15. Lorsque la puissance augmente, le spectre de luminescence ne comporte qu'une seule raie qui s'élargit progressivement. Lorsque l'interaction avec la mer de Fermi devient suffisamment grande, un deuxième pic apparaît et la largeur de la première raie diminue. Par la suite, l'interaction avec la mer de Fermi augmente entraînant un élargissement de l'une ou des deux raies. Pour les expériences où c'est la tension qui varie, les mesures de STF indiquent que la largeur des raies de luminescence est à peu près constante puisque  $T_2$  ne varie presque pas. Lorsque la tension se rapproche du seuil  $U'_2$ , c'est à dire lorsque l'interaction avec la mer de Fermi augmente, un deuxième pic apparaît dont l'intensité grandit peu à peu. Il est possible d'envisager que la raie qui apparaît correspond à un autre état de charge de la boîte, par exemple l'état  $X^{2-}$  qui est très proche en énergie comme nous l'avons vu dans la partie 4.2.3, et qui serait excité par le même pulse laser.

Nous constatons donc que la puissance d'excitation et la tension appliquée semblent avoir des effets similaires. Cela signifierait qu'à partir d'une certaine tension, un deuxième électron passe par

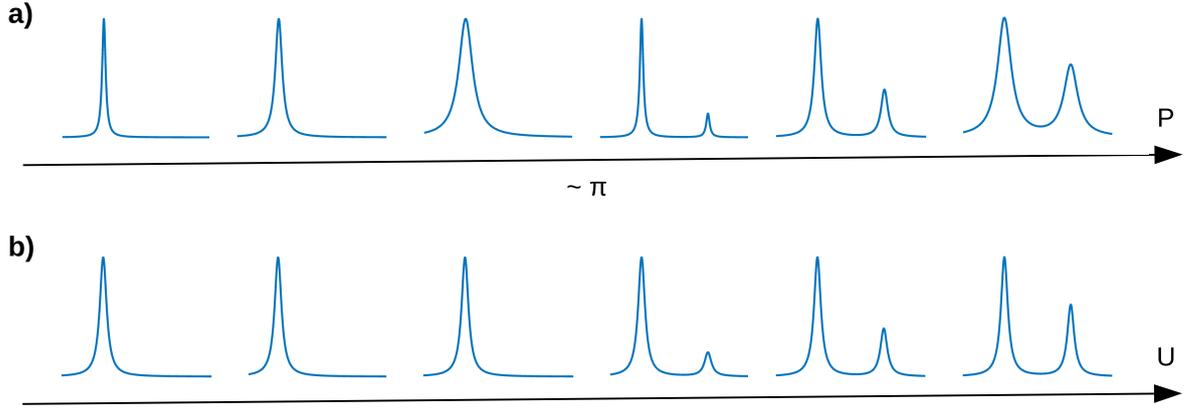


FIGURE 4.15 – Évolution de du spectre d'émission en fonction de la puissance d'excitation pour une tension proche du seuil  $U'_2$  (a) et de la tension appliquée pour une puissance supérieure à celle correspondant à une impulsion  $\pi$  (b).

effet tunnel dans la BQ créant l'état  $X^{2-}$ . Il y aurait alors coexistence des deux états chargés sur une certaine plage de tension d'où l'observation des battements entre ces deux niveaux. Cependant à ce jour, nous n'avons aucune interprétation satisfaisante de ce phénomène.

## 4.5 Conclusion

Ainsi, nous avons montré dans ce chapitre que l'application d'un champ électrique sur le plan de BQ permet l'observation systématique de la luminescence résonante de l'état  $X^-$ , avec une grande efficacité. Nous avons interprété ce phénomène en considérant l'interaction avec la mer de Fermi à proximité du plan de boîtes qui permet, par passage tunnel des électrons, de contrôler de manière déterministe l'état de charge des BQ. Cependant, l'application d'un champ électrique extérieur n'empêche pas les fluctuations de l'environnement électrostatique, ce qui entraîne un élargissement inhomogène de la raie de luminescence et a pour conséquence que le temps de cohérence mesuré par STF reste loin de la limite radiative. Malgré la structure compliquée de notre échantillon, nous avons montré que l'état du système à deux niveaux peut être contrôlé de manière déterministe et que les BQ restent de bonnes sources de photons uniques.

Dans un deuxième temps, nous avons étudié l'interaction entre une BQ et la mer de Fermi. Nous avons mis en évidence qualitativement que cette interaction est responsable des variations d'intensité de la luminescence résonante à proximité des seuils marquant le passage d'un état de charge de la boîte à un autre, mais aussi de l'évolution du temps de cohérence des photons émis par la BQ. Nous avons discuté rapidement une possible approche théorique pour expliquer nos mesures, qui consiste à considérer des états hybrides entre la BQ et la mer de Fermi.

Enfin, nous avons observé l'apparition de battements dans les mesures de STF, caractéristiques de la présence de deux raies distinctes de luminescence. Ces battements restent à ce jour inexpliqués mais nous pouvons penser que le développement du modèle théorique mentionné précédemment pourrait nous donner des pistes d'interprétation.



# Conclusion



Dans ce manuscrit nous avons présenté une étude des processus d'interaction entre une BQ InAs/GaAs et son environnement grâce à l'analyse de la luminescence émise sous excitation résonante. Ces expériences ont été rendues possibles grâce à l'utilisation d'une géométrie guidée permettant de séparer spatialement l'excitation laser et la luminescence émise par la BQ, ainsi que par l'utilisation d'un cryostat à circuit fermé assurant une grande stabilité du système expérimental.

Nous avons réalisé des mesures par STF du temps de cohérence des photons émis par une BQ sous excitation résonante. Nous avons montré que cette mesure tient compte des processus de décohérence dus à la fois à l'interaction entre la BQ étudiée et les vibrations de la matrice solide, mais aussi aux fluctuations de l'environnement électrostatique. Au contraire, les expériences à deux photons réalisés dans un montage de type HOM où les photons qui interfèrent sont émis avec un délai de l'ordre de la nanoseconde, ne sondent que les processus de décohérence dus à l'interaction avec les vibrations de la matrice solide. Des mesures en température ont mis en évidence une chute brutale de l'indiscernabilité lorsque la température dépasse la dizaine de Kelvin. Afin d'interpréter ces résultats, nous avons développé une collaboration fructueuse avec une équipe de théoriciens qui a abouti à l'utilisation d'un modèle microscopique de l'interaction électron-phonon, et a permis l'obtention d'une expression analytique de l'indiscernabilité en fonction de la température. Nous avons identifié deux processus distincts d'interaction aux phonons responsables de la perte de cohérence : des transitions réelles assistées par phonons, à l'origine des PSB très large spectralement, et des transitions virtuelles assistées par phonons, dues à la présence d'états excités de plus haute énergie dans la boîte et à l'origine d'un élargissement de la ZPL. Si la perte de cohérence due à la présence de photons issus des PSB peut être simplement évitée en utilisant un procédé de filtrage spectral, celle due à l'élargissement de la ZPL nécessite une réduction des processus de déphasage pur, réalisable en réduisant le temps de vie de l'état excité, par exemple par effet Purcell [131].

Nous nous sommes par la suite consacrés à l'étude d'un échantillon de type diode p-i-n nous permettant d'appliquer un champ électrique dans la direction de croissance des BQ. Nous avons mis en évidence que cette configuration expérimentale permet l'observation systématique et efficace de la luminescence résonante pour la transition correspondant à la recombinaison radiative de l'état  $X^-$ . Cet effet a été interprété comme dû à la proximité d'une mer de Fermi rendant possible le passage par effet tunnel des électrons entre les BQ et le contact dopé  $n$ , permettant ainsi le contrôle déterministe de l'état de charge des BQ. La réalisation de mesures de l'intensité émise en fonction de la tension et de la température ainsi que celles du temps de cohérence des photons émis par STF, nous ont permis de discuter qualitativement l'interaction entre la mer des Fermi et une BQ sous excitation résonante.

Les perspectives de ce travail sont multiples, la plus naturelle étant évidemment de poursuivre l'interprétation des expériences réalisées sur l'échantillon contacté électriquement. Pour cela il est envisageable d'utiliser le modèle d'Anderson qui prend en compte l'échange de porteurs par effet tunnel entre un petit système (ici une BQ) et un réservoir (la mer de Fermi). Deux stratégies sont possibles, la diagonalisation du hamiltonien d'Anderson, ou l'obtention de l'état fondamental du système en fonction de la tension appliquée en minimisant numériquement l'énergie. La première de ces stratégies a l'intérêt de permettre la compréhension des phénomènes physiques entrant en jeu grâce à une résolution analytique, mais présente des difficultés techniques. La deuxième permet

de s'affranchir de la technicité du calcul mais nécessite un algorithme de minimisation de l'énergie performant et ne permet pas d'appréhender la physique entrant en jeu dans ce problème.

En ce qui concerne les battements présentés à la fin de ce manuscrit, la priorité semble être d'identifier la nature du deuxième état apparaissant à proximité du seuil de la transition  $X^-/X^{2-}$ . L'utilisation d'une cavité Fabry-Perot pour une analyse fine de la luminescence permettrait d'avoir la résolution spectrale nécessaire à la mesure directe du spectre de luminescence. Nous pourrions alors observer directement l'évolution des raies qui interfèrent en fonction de la tension et de la puissance ce qui constituerait une information complémentaire à celles extraites des expériences de STF. En particulier, nous pourrions remonter à la forme des deux raies de luminescence et ainsi obtenir des informations complémentaires sur les processus à l'origine de leur élargissement.

La compréhension des mécanismes de décohérence, ainsi que le contrôle de l'émission résonante permettent maintenant d'envisager plusieurs expériences, dans la continuité de ce travail. Notamment celles visant à intriquer deux BQ. Une expérience réalisable dans un futur proche, consiste à mettre en évidence l'interaction entre deux BQ via un faisceau non-absorbé. Cette idée repose sur des travaux théoriques originaux de Combescot *et al* [155] et nécessite deux BQ proches l'une de l'autre et sans couplage, c'est-à-dire lorsque la présence de la deuxième BQ ne modifie pas la structure électronique de la première. Cela peut être réalisé en utilisant une procédure de croissance des boîtes particulière, appelée *droplet epitaxy* en anglais, qui permet de placer de manière déterministe deux BQ l'une au dessus de l'autre, à une distance d'une vingtaine de nanomètres [156].

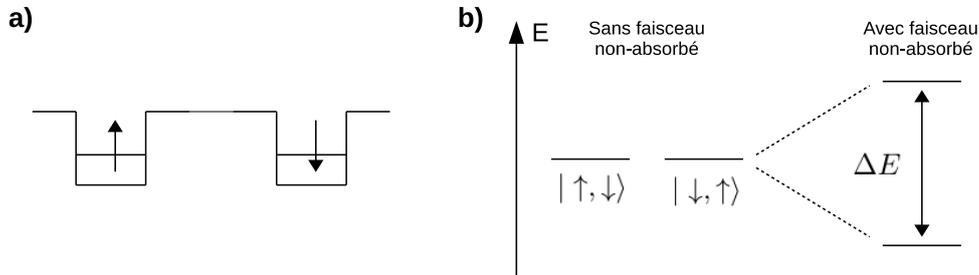


FIGURE 4.16 – (a) Spins opposés dans deux BQ à quelques dizaines de nanomètres l'une de l'autre. (b) Levée de la dégénérescence des états  $|\uparrow, \downarrow\rangle$  et  $|\downarrow, \uparrow\rangle$  en présence d'un faisceau laser non absorbé.

Considérons deux électrons piégés dans chacune de ces boîtes et préparés initialement avec un spin opposé comme schématisé Figure 4.16 (a). Puisque les boîtes sont supposées sans interaction, les états  $|\uparrow, \downarrow\rangle$  et  $|\downarrow, \uparrow\rangle$  sont dégénérés et stationnaires. La présence d'un faisceau non absorbé légèrement décalé de la transition optique des BQ (supposé identiques) ajoute un terme d'interaction lumière-matière au hamiltonien. Combescot *et al*, montrent que ce faisceau supplémentaire entraîne une levée de la dégénérescence des états mentionnés précédemment (voir Figure 4.16 (b)) et que l'état du système à un instant  $t$  est de la forme  $|\Psi(t)\rangle = \cos\left(\frac{\Delta E}{2\hbar}t\right)|\uparrow, \downarrow\rangle + \sin\left(\frac{\Delta E}{2\hbar}t\right)|\downarrow, \uparrow\rangle$ , où  $\Delta E$  est la valeur de l'écart en énergie entre les deux nouveaux états propres du système, une fois le faisceau non-absorbé branché. Nous constatons donc que pour un temps  $t$  tel que  $\Delta E t = \pi\hbar$ , le système initialement dans l'état  $|\uparrow, \downarrow\rangle$  se retrouve dans l'état  $|\downarrow, \uparrow\rangle$ . La réalisation de cette expérience

---

permettrait de mettre en évidence le fait que des photons non absorbés ont un impact important sur un système quantique [157], mais aussi d'intriquer deux spins dans deux BQ distinctes, étape indispensable pour les procédés d'informatique quantique.



# Annexes



# Annexe A

## Les différentes formulations de la mécanique quantique

### Sommaire

---

<b>A.1 Représentation Schrödinger</b> . . . . .	<b>159</b>
<b>A.2 Représentation Heisenberg</b> . . . . .	<b>160</b>
<b>A.3 Représentation interaction</b> . . . . .	<b>161</b>

---

Décrire l'évolution temporelle d'un système est l'un des problèmes récurrents que les physiciens doivent résoudre. En mécanique quantique, il existe trois représentations (ou formulations) fréquemment utilisées pour traiter ce problème. Nous présentons dans cette annexe ces trois différentes représentations (Schrödinger, Heisenberg et interaction) en donnant pour chacune les équations gouvernant l'évolution temporelle du système. En pratique, nous choisirons selon le problème considéré, la représentation permettant la résolution la plus simple.

### A.1 Représentation Schrödinger

En représentation Schrödinger, l'évolution temporelle du système étudié est contenue dans le vecteur d'état qui décrit le système à tout instant et s'écrit  $|\Psi(t)\rangle$ . L'évolution temporelle est gouvernée par l'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{d|\Psi\rangle}{dt} = \hat{H}|\Psi\rangle, \quad (\text{A.1.1})$$

où  $\hat{H}$  est le Hamiltonien du système. Nous pouvons définir l'opérateur d'évolution temporelle qui s'écrit, lorsque  $\hat{H}$  est indépendant du temps,

$$\hat{U}(t - t') = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}(t-t')}. \quad (\text{A.1.2})$$

L'évolution temporelle du système est alors donnée par  $|\Psi(t)\rangle = \hat{U}(t - t')|\Psi(t')\rangle$  ce qui permet d'écrire la matrice densité du système

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(t) &= |\Psi(t)\rangle\langle\Psi(t)| \\ &= \hat{U}(t)|\Psi\rangle\langle\Psi|\hat{U}^\dagger(t) \\ &= \hat{U}(t)\hat{\rho}(0)\hat{U}^\dagger(t), \end{aligned} \quad (\text{A.1.3})$$

qui dépend explicitement du temps. A partir de l'équation de Schrödinger (A.1.1), nous obtenons l'équation maîtresse qui donne l'évolution temporelle de la matrice densité :

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{\rho}]. \quad (\text{A.1.4})$$

L'opérateur d'évolution  $\hat{U}$  a les propriétés suivantes :

$$\hat{U}^\dagger(t-t')\hat{U}(t-t') = 1, \quad (\text{A.1.5a})$$

$$\hat{U}^\dagger(t-t') = \hat{U}(t'-t), \quad (\text{A.1.5b})$$

$$\hat{U}(t-t')\hat{U}(t'-t'') = \hat{U}(t-t''). \quad (\text{A.1.5c})$$

Eq. (A.1.5a) correspond au fait que  $\hat{U}$  est un opérateur unitaire, Eq. (A.1.5b) vient de la symétrie de retournement temporel et Eq. (A.1.5c) décrit la composition de l'évolution temporelle.

## A.2 Représentation Heisenberg

Dans la représentation Heisenberg, le vecteur d'état  $|\Psi\rangle$  ne dépend pas de  $t$  et l'évolution temporelle du système est totalement contenue dans la dépendance temporelle des opérateurs définis dans la représentation Heisenberg comme

$$\begin{aligned} \hat{O}_H(t) &= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\hat{O}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t} \\ &= \hat{U}^\dagger(t)\hat{O}\hat{U}(t). \end{aligned} \quad (\text{A.2.1})$$

Avec cette définition et dans le cas où l'opérateur  $\hat{O}$  ne dépend pas du temps, nous obtenons l'équation d'Heisenberg qui donne l'évolution temporelle du système dans la représentation d'Heisenberg

$$\frac{d\hat{O}_H}{dt} = \frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{O}_H(t)]. \quad (\text{A.2.2})$$

Dans cette représentation, la matrice densité donnée par  $\hat{\rho}_H = |\Psi\rangle\langle\Psi|$  est indépendante du temps  $t$ . La valeur moyenne d'un opérateur  $\hat{O}_H$  s'écrit

$$\begin{aligned} \langle\hat{O}_H(t)\rangle &= \text{Tr}[\hat{O}_H(t)\hat{\rho}_H] \\ &= \text{Tr}[\hat{U}^\dagger(t)\hat{O}\hat{U}(t)\hat{\rho}_H] \\ &= \text{Tr}[\hat{O}\hat{U}(t)\hat{\rho}_H\hat{U}^\dagger(t)] \\ &= \text{Tr}[\hat{O}\hat{\rho}(t)] \end{aligned} \quad (\text{A.2.3})$$

où nous avons utilisé l'invariance de la Trace par permutations circulaires, ainsi que les équations Eq. (A.2.1) et Eq. (A.1.3). Nous constatons que la valeur moyenne d'un opérateur est connue à chaque instant si l'évolution temporelle de la matrice densité en représentation Schrödinger est connue.

### A.3 Représentation interaction

La représentation interaction peut être vue comme une situation intermédiaire entre les représentations Schrödinger et Heisenberg. Elle est utilisée quand le Hamiltonien total du système peut se mettre sous la forme

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}, \quad (\text{A.3.1})$$

où les états propres de  $\hat{H}_0$  sont connus alors que ceux de  $\hat{V}$  ne le sont pas. L'intérêt principal de la représentation interaction est d'obtenir une expression simplifiée de l'équation de Schrödinger (A.1.1) en "dissimulant" la contribution de  $\hat{H}_0$ . Dans cet esprit, nous définissons

$$\begin{aligned} |\tilde{\Psi}(t)\rangle &= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0 t} |\Psi(t)\rangle \\ &= \hat{U}_0^\dagger(t) |\Psi(t)\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.3.2})$$

où nous avons noté  $\hat{U}_0(t-t') = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_0(t-t')}$  de la même manière que  $\hat{U}(t-t')$  dans la partie A.1. En représentation interaction, l'équation de Schrödinger devient

$$i\hbar \frac{d|\tilde{\Psi}\rangle}{dt} = \hat{V}(t) |\tilde{\Psi}(t)\rangle \quad \text{avec} \quad \hat{V} = \hat{U}_0^\dagger(t) \hat{V} \hat{U}_0(t). \quad (\text{A.3.3})$$

La matrice densité est définie par

$$\hat{\rho}(t) = |\tilde{\Psi}(t)\rangle \langle \tilde{\Psi}(t)|, \quad (\text{A.3.4})$$

et comme dans la partie A.1 nous obtenons, en utilisant les équations (A.3.3) et (A.3.4), l'équation maîtresse en représentation interaction qui donne l'évolution temporelle de  $\hat{\rho}$

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar} [\hat{V}(t), \hat{\rho}(t)]. \quad (\text{A.3.5})$$

Finalement, l'équation reliant  $\hat{\rho}(t)$  à  $\hat{\rho}(t)$  en représentation Schrödinger est

$$\begin{aligned} \hat{\rho}(t) &= \hat{U}_0^\dagger(t) |\Psi(t)\rangle \langle \Psi(t)| \hat{U}_0(t) \\ &= \hat{U}_0^\dagger(t) \hat{\rho}(t) \hat{U}_0(t) \end{aligned} \quad (\text{A.3.6})$$

où nous avons utilisé les équations (A.3.4) et (A.3.2). Cette équation sera utile pour passer de l'équation maîtresse dérivée en représentation interaction à celle en représentation Schrödinger, par exemple pour le calcul de la valeur moyenne d'un opérateur.



## Annexe B

# Équation maîtresse dans le formalisme de Lindblad

### Sommaire

---

<b>B.1</b>	<b>Approximation de Born</b>	<b>164</b>
<b>B.2</b>	<b>Approximation Markovienne</b>	<b>165</b>
<b>B.3</b>	<b>Approximation séculaire</b>	<b>165</b>
B.3.1	Décomposition sur les opérateurs propres de $H_S$	166
B.3.2	Hamiltonien d'interaction en représentation interaction	166
B.3.3	Equation maîtresse dans le formalisme de Lindblad	167
<b>B.4</b>	<b>En pratique : l'équation maîtresse dans le formalisme de Lindblad</b>	<b>170</b>

---

Nous considérons ici un "petit" système  $S$  (dénommé simplement système dans la suite) couplé à un réservoir  $B$ . Le réservoir décrit l'environnement du système  $S$  et peut être, par exemple, un bain de photons ou de phonons. L'idée de cette annexe est de dériver, sous certaines approximations qui seront détaillées dans la suite, l'équation maîtresse régissant l'évolution temporelle du système  $S$  [78]. Dans cette optique, il est utile de définir trois temps caractéristiques, le temps de corrélation du réservoir  $\tau_B$ , le temps de relaxation du système  $\tau_r$  et le temps caractéristique lié à la fréquence de la transition de la boîte étudiée  $\tau_S \sim |\omega - \omega'|^{-1}$  avec  $\omega \neq \omega'$  où  $\hbar\omega$  et  $\hbar\omega'$  sont les énergies propres du système  $S^1$ . L'équation maîtresse sera valide si les trois hypothèses suivantes sont vérifiées :

1. L'interaction entre le système  $S$  et le réservoir doit être "faible" (approximation de Born), de manière à pouvoir écrire à tout instant la matrice densité totale  $\hat{\rho}$  comme le produit tensoriel de la matrice densité du système  $S$  et de celles du réservoir :  $\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_S(t) \otimes \hat{\rho}_B(t)$ .
2. Les effets de mémoire doivent être négligeables, c'est l'approximation Markovienne qui est valide si  $\tau_B \ll \tau_r$ , c'est-à-dire si les excitations du réservoir s'amortissent beaucoup plus vite que celle du système  $S$ .
3. Les termes oscillants rapidement dans l'équation maîtresse doivent être sans importance sur l'évolution temporelle du système  $S$ . Cette approximation, appelée approximation séculaire,

---

1. Plus rigoureusement, on définit les  $\tau_S^{i,j} \sim |\omega_i - \omega'_j|^{-1}$  avec  $\omega_i \neq \omega'_j$  où  $\hbar\omega_i$  et  $\hbar\omega'_j$  sont des énergies propres du système  $S$ .

est valide si  $\tau_S \ll \tau_r$ . Elle est généralement vérifiée pour les systèmes optiques où elle porte de nom d'approximation de l'onde tournante.

Nous noterons  $\mathcal{H}_S$  et  $\mathcal{H}_B$  les espaces de Hilbert du système  $S$  et du réservoir et  $\hat{H}_S$  et  $\hat{H}_B$  leur hamiltoniens. Dans le cas où il n'y a pas d'interaction entre le système et le réservoir, l'hamiltonien total est donné par  $\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_B$  avec  $\hat{H}_S \in \mathcal{H}_S$  et  $\hat{H}_B \in \mathcal{H}_B$ .

## B.1 Approximation de Born

Considérons maintenant une interaction "faible" entre le système  $S$  et le réservoir. L'approximation de Born consiste à supposer que l'influence du système sur le réservoir est négligeable. En conséquence, la matrice densité du réservoir  $\hat{\rho}_B$  n'est affectée que de manière négligeable par l'interaction et nous supposons que le réservoir est, à tout instant, dans un état stationnaire, c'est à dire que  $[\hat{H}_B, \hat{\rho}_B] = 0$ . Sa matrice densité  $\hat{\rho}_B$  est alors indépendante du temps et la matrice densité du système total s'écrit

$$\hat{\rho}(t) \approx \hat{\rho}_S(t) \otimes \hat{\rho}_B, \quad (\text{B.1.1})$$

où  $\hat{\rho}_S$  et  $\hat{\rho}_B$  sont les matrices densité réduites du système et du réservoir reliées à  $\hat{\rho}$  par  $\hat{\rho}_S = \text{Tr}_B[\hat{\rho}(t)]$  et  $\hat{\rho}_B = \text{Tr}_S[\hat{\rho}(t)]$ <sup>1</sup>. Le hamiltonien total du système est supposé de la forme

$$\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_B + \hat{H}_I, \quad (\text{B.1.2})$$

où  $\hat{H}_I \in \mathcal{H}_S \otimes \mathcal{H}_B$  décrit l'interaction entre le système  $S$  et le réservoir. L'équation maîtresse en représentation interaction (voir Eq. (A.3.5) de l'annexe A) s'écrit

$$\frac{d\hat{\rho}}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_I(t), \hat{\rho}(t)], \quad (\text{B.1.3})$$

et en intégrant cette équation nous avons

$$\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}(0) - \frac{i}{\hbar} \int_0^t ds [\hat{H}_I(s), \hat{\rho}(s)]. \quad (\text{B.1.4})$$

En injectant Eq. (B.1.4) dans Eq. (B.1.3) et en prenant la trace partielle sur le réservoir nous obtenons l'équation maîtresse pour la matrice densité réduite du système  $S$  dans l'approximation de Born :

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \text{Tr}_B \left( \left[ \hat{H}_I(t), \left[ \hat{H}_I(s), \hat{\rho}_S(s) \otimes \hat{\rho}_B \right] \right] \right), \quad (\text{B.1.5})$$

où nous avons supposé  $\text{Tr}_B \left( \left[ \hat{H}_I(t), \hat{\rho}(0) \right] \right) = 0$ . Nous verrons dans la partie B.3 que cette hypothèse peut être formulée dans une forme plus explicite.

1. Les notations  $\text{Tr}_B[\dots]$  et  $\text{Tr}_S[\dots]$  sont les traces partielles par rapport au réservoir et au système  $S$  respectivement.

## B.2 Approximation Markovienne

L'équation (B.1.5) montre que l'état du système à l'instant  $t$  dépend des états précédents du système via  $\hat{\rho}_S(s)$ . En d'autres termes, le système  $S$  à l'instant  $t$  se "souvient" de son évolution depuis l'instant initial. L'approximation de Markov consiste à supposer que les excitations du réservoir s'amortissent sur des temps beaucoup plus courts que ceux sur lesquels le système  $S$  varie appréciablement, ce qui correspond à la condition mathématique  $\tau_B \ll \tau_r$ . Nous pouvons alors négliger les effets de mémoire et remplacer  $\hat{\rho}_S(s)$  par  $\hat{\rho}_S(t)$  dans Eq. (B.1.5), nous obtenons alors l'équation dite de Redfield [158] qui s'écrit

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^t ds \text{Tr}_B \left( \left[ \hat{H}_I(t), [\hat{H}_I(s), \hat{\rho}_S(t) \otimes \hat{\rho}_B] \right] \right). \quad (\text{B.2.1})$$

Nous réalisons ensuite le changement de variables  $s' = t - s$  et faisons tendre la borne supérieure de l'intégrale vers l'infini. Étant donné que nous avons supposé qu'il n'y a pas d'effets de mémoire, cette dernière approximation est bien justifiée, car nous pouvons regarder aussi loin que nous le voulons dans le temps, la contribution supplémentaire de l'intégrale sera toujours nulle<sup>1</sup>. L'équation maîtresse dans l'approximation de Born-Markov s'écrit donc

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = -\frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds' \text{Tr}_B \left( \left[ \hat{H}_I(t), [\hat{H}_I(t-s'), \hat{\rho}_S(t) \otimes \hat{\rho}_B] \right] \right). \quad (\text{B.2.2})$$

Finalement, en utilisant le fait que

$$\left[ \hat{H}_I(t), \left[ \hat{H}_I(t-s), \hat{\rho}(t) \right] \right] = - \left[ \hat{H}_I(t-s) \hat{\rho}(t) \hat{H}_I(t) - \hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t-s) \hat{\rho}(t) + \text{h.c.} \right], \quad (\text{B.2.3})$$

nous pouvons réécrire l'équation maîtresse sous une forme symétrique

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds \left( \text{Tr}_B \left[ \hat{H}_I(t-s) \hat{\rho}(t) \hat{H}_I(t) \right] - \text{Tr}_B \left[ \hat{H}_I(t) \hat{H}_I(t-s) \hat{\rho}(t) \right] \right) + \text{h.c.} \quad (\text{B.2.4})$$

utile dans la suite.

## B.3 Approximation séculaire

Dans cette partie, nous montrons que l'utilisation de l'approximation séculaire, qui consiste à négliger les termes oscillant "rapidement", permet d'écrire l'équation maîtresse sous la forme de Lindblad. Cette formulation est très utile en pratique puisqu'elle permet d'obtenir l'équation maîtresse pour le système  $S$ , en "capturant" l'intégralité des effets de l'environnement dans seulement un paramètre. Afin de détailler la procédure conduisant à l'équation maîtresse en représentation interaction sous la forme de Lindblad, nous écrirons le hamiltonien d'interaction en représentation Schrödinger sous sa forme la plus générale

$$\hat{H}_I = \sum_{\alpha} \hat{A}_{\alpha} \otimes \hat{B}_{\alpha}, \quad (\text{B.3.1})$$

où  $\hat{A}_{\alpha}^{\dagger} = \hat{A}_{\alpha}$  et  $\hat{B}_{\alpha}^{\dagger} = \hat{B}_{\alpha}$  avec  $\hat{A}_{\alpha} \in \mathcal{H}_S$  et  $\hat{B}_{\alpha} \in \mathcal{H}_B$ .

1. Pour plus de précisions sur cette approximation, voir ref. [78].

### B.3.1 Décomposition sur les opérateurs propres de $H_S$

L'astuce est de décomposer les opérateurs  $\hat{A}_\alpha$  sur les opérateurs propres du hamiltonien du système  $S$  défini comme  $[\hat{H}_S, \hat{O}] = \lambda \hat{O}$  avec  $\lambda \in \mathbb{C}$ . Nous noterons  $|\epsilon\rangle$  les vecteurs propres de  $\hat{H}_S$ , et  $\hat{\Pi}(\epsilon)$  le projecteur sur le sous espace propre associé à la valeur propre  $\epsilon$ . Nous pouvons alors définir les opérateurs

$$\hat{A}_\alpha(\omega) = \sum_{\hbar\omega = \epsilon' - \epsilon} \hat{\Pi}(\epsilon) \hat{A}_\alpha \hat{\Pi}(\epsilon'), \quad (\text{B.3.2})$$

qui satisfont la relation

$$\begin{aligned} [\hat{H}_S, \hat{A}_\alpha(\omega)] &= \left[ \sum_{\tilde{\epsilon}} \tilde{\epsilon} |\tilde{\epsilon}\rangle \langle \tilde{\epsilon}|, \sum_{\hbar\omega = \epsilon' - \epsilon} |\epsilon\rangle \langle \epsilon| \hat{A}_\alpha |\epsilon'\rangle \langle \epsilon'| \right] \\ &= \sum_{\hbar\omega = \epsilon' - \epsilon} (\epsilon - \epsilon') |\epsilon\rangle \langle \epsilon| \hat{A}_\alpha |\epsilon'\rangle \langle \epsilon'| \\ &= -\hbar\omega \hat{A}_\alpha(\omega), \end{aligned} \quad (\text{B.3.3})$$

ce qui montre que  $\hat{A}_\alpha(\omega)$  est un opérateur propre de  $\hat{H}_S$ . Nous pouvons aussi vérifier que

$$\begin{aligned} \sum_{\omega} \hat{A}_\alpha(\omega) &= \sum_{\omega} \sum_{\hbar\omega = \epsilon' - \epsilon} \hat{\Pi}(\epsilon) \hat{A}_\alpha \hat{\Pi}(\epsilon') \\ &= \sum_{\epsilon} \sum_{\epsilon'} \hat{\Pi}(\epsilon) \hat{A}_\alpha \hat{\Pi}(\epsilon') \\ &= \underbrace{\sum_{\epsilon} \hat{\Pi}(\epsilon)}_1 \hat{A}_\alpha \underbrace{\sum_{\epsilon'} \hat{\Pi}(\epsilon')}_1 \\ &= \hat{A}_\alpha, \end{aligned} \quad (\text{B.3.4})$$

ce qui permet d'écrire  $\hat{H}_I$  en fonction des opérateurs propres de  $\hat{H}_S$

$$\hat{H}_I = \sum_{\alpha, \omega} \hat{A}_\alpha(\omega) \otimes \hat{B}_\alpha. \quad (\text{B.3.5})$$

### B.3.2 Hamiltonien d'interaction en représentation interaction

Écrivons maintenant le hamiltonien d'interaction en représentation interaction afin de pouvoir l'injecter dans l'équation (B.2.4). Nous avons

$$\begin{aligned} \hat{\hat{H}}_I(t) &= e^{\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t} \hat{H}_I e^{-\frac{i}{\hbar}(\hat{H}_S + \hat{H}_B)t} \\ &= \sum_{\alpha, \omega} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} \hat{A}_\alpha(\omega) e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} \otimes e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t} \hat{B}_\alpha e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t} \\ &= \sum_{\alpha, \omega} e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} \hat{A}_\alpha(\omega) e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} \otimes \hat{\hat{B}}_\alpha(t), \end{aligned} \quad (\text{B.3.6})$$

où nous avons posé  $\hat{\hat{B}}_\alpha(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t} \hat{B}_\alpha e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_B t}$ . Pour calculer le premier terme de l'équation précédente nous utilisons le théorème de Baker-Campbell-Hausdorff rappelé ci dessous.

**Théorème de Baker-Campbell-Hausdorff**

Le théorème de Baker-Campbell-Hausdorff est très utile pour transformer un opérateur  $\hat{O}$  selon la relation  $\hat{O} = e^{\hat{S}}\hat{O}e^{-\hat{S}}$  où  $\hat{S}$  est un opérateur. Le théorème donne

$$\begin{aligned}\hat{O} &= e^{\hat{S}}\hat{O}e^{-\hat{S}} \\ &= \hat{O} + [\hat{S}, \hat{O}] + \frac{1}{2!} [\hat{S}, [\hat{S}, \hat{O}]] + \frac{1}{3!} [\hat{S}, [\hat{S}, [\hat{S}, \hat{O}]]] + \dots \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{C_n(\hat{S}, \hat{O})}{n!}\end{aligned}\tag{B.3.7}$$

où  $C_n(\hat{S}, \hat{O}) = [\hat{S}, \dots [\hat{S}, \hat{O}] \dots]$  a  $n$  commutateurs et où  $C_0(\hat{S}, \hat{O}) = \hat{O}$ .

L'opérateur  $\hat{A}_\alpha(\omega)$  en représentation interaction s'écrit donc

$$\begin{aligned}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t}\hat{A}_\alpha(\omega)e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_S t} &= \sum_n \frac{C_n(it\hat{H}_S/\hbar, \hat{A}_\alpha(\omega))}{n!} \\ &= \sum_n \frac{(-it\omega)^n}{n!}\hat{A}_\alpha(\omega) \\ &= e^{-i\omega t}\hat{A}_\alpha(\omega)\end{aligned}\tag{B.3.8}$$

où nous avons utilisé Eq. (B.3.3) pour montrer que  $C_n(it\hat{H}_S/\hbar, \hat{A}_\alpha(\omega)) = (-it\omega)^n \hat{A}_\alpha(\omega)$ . Le hamiltonien d'interaction en représentation interaction s'écrit donc finalement

$$\hat{H}_I(t) = \sum_{\alpha, \omega} e^{-i\omega t}\hat{A}_\alpha(\omega) \otimes \hat{B}_\alpha(t).\tag{B.3.9}$$

**Remarque :**

A partir de la dernière expression de  $\hat{H}_I$ , nous pouvons montrer que l'hypothèse  $\text{Tr}_B \left( \left[ \hat{H}_I(t), \hat{\rho}(0) \right] \right) = 0$  utilisé dans la partie B.1 pour obtenir Eq. (B.1.5) devient

$$\sum_{\alpha, \omega} \text{Tr}_B[\tilde{B}_\alpha(t)\hat{\rho}_B] \times e^{-i\omega t}[\hat{A}_\alpha(\omega), \hat{\rho}_S(0)] = 0.\tag{B.3.10}$$

En conséquence, avant d'utiliser le formalisme développé ici, nous vérifierons que cette condition est bien remplie.

**B.3.3 Equation maîtresse dans le formalisme de Lindblad**

Nous dérivons dans cette partie la méthodologie pour obtenir l'équation maîtresse (en représentation interaction) pour la matrice densité réduite du système  $S$  sous la forme de Lindblad

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = D[\hat{\rho}_S],\tag{B.3.11}$$

la question étant de trouver l'expression de  $D$ .

Commençons par calculer le premier terme de l'équation (B.2.4) en utilisant l'expression de  $\hat{H}_I$  donné Eq. (B.3.9) :

$$\begin{aligned}\int_0^t ds \text{Tr}_B \left[ \hat{H}_I(t-s)\hat{\rho}(t)\hat{H}_I(t) \right] &= \sum_{\alpha, \beta} \sum_{\omega, \omega'} e^{i(\omega' - \omega)t} \hat{A}_\beta(\omega)\hat{\rho}_S(t)\hat{A}_\alpha^\dagger(\omega') \\ &\quad \times \int_0^{+\infty} ds e^{i\omega s} \text{Tr} \left[ \hat{B}_\alpha^\dagger(t)\hat{B}_\beta(t-s)\hat{\rho}_B \right]\end{aligned}\tag{B.3.12}$$

où nous avons utilisé l'invariance de la trace sous permutation circulaire. En utilisant la même procédure pour le second terme de l'équation (B.2.4) nous obtenons

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega,\omega'} e^{i(\omega'-\omega)t} \Gamma_{\alpha,\beta}(\omega) \left[ \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega') - \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega') \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \right] + \text{h.c.}, \quad (\text{B.3.13})$$

avec

$$\begin{aligned} \Gamma_{\alpha,\beta}(\omega) &= \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds e^{i\omega s} \text{Tr} \left[ \hat{B}_\alpha^\dagger(t) \hat{B}_\beta(t-s) \hat{\rho}_B \right] \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(t) \hat{B}_\beta(t-s) \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(s) \hat{B}_\beta(0) \rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.3.14})$$

la dernière égalité ayant été obtenue en utilisant la définition de  $\hat{B}_\alpha(t)$ , l'invariance de la trace sous permutation circulaire, et le fait que  $\hat{\rho}_B$  ne dépend pas du temps puisque le réservoir est supposé être dans un état stationnaire (voir partie B.1). Remarquons dans Eq. (B.3.14) la présence de la fonction de corrélation du réservoir qui permet de définir le temps de relaxation du réservoir  $\tau_B$  comme le temps caractéristique de décroissance de  $\langle \hat{B}_\alpha^\dagger(s) \hat{B}_\beta(0) \rangle$  représenté Figure B.1.

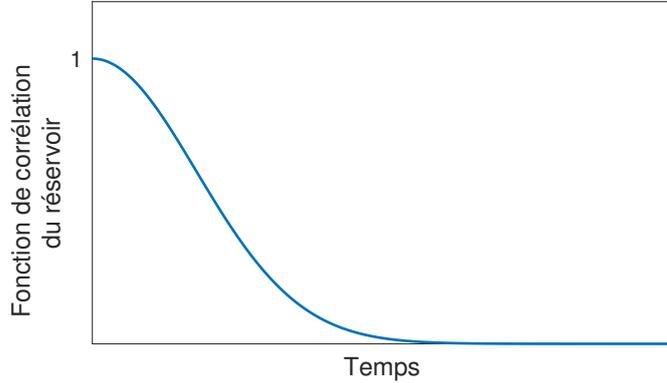


FIGURE B.1 – Forme caractéristique de la fonction de corrélation du réservoir, par exemple un bain de phonons à haute température. Le temps de relaxation du réservoir  $\tau_B$  est défini comme le temps caractéristique de décroissance de la fonction de corrélation du réservoir  $\langle \hat{B}_\alpha^\dagger(t) \hat{B}_\beta(0) \rangle$ .

Nous réalisons maintenant l'approximation séculaire qui consiste à négliger les termes oscillant rapidement, c'est-à-dire les termes avec  $\omega \neq \omega'$ . Cette approximation est valide si l'évolution temporelle intrinsèque du système  $S$ , qui se fait sur un temps caractéristique  $\tau_S \sim |\omega - \omega'|^{-1}$ , est très rapide par rapport au temps de relaxation de  $S$  :  $\tau_S \ll \tau_r$ . L'équation (B.3.13) s'écrit alors

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega} \Gamma_{\alpha,\beta}(\omega) \left[ \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) - \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \right] + \text{h.c.} \quad (\text{B.3.15})$$

Pour la suite, il est utile de définir les quantités scalaires  $\gamma_{\alpha,\beta}(\omega)$  et  $S_{\alpha,\beta}(\omega)$

$$\gamma_{\alpha,\beta}(\omega) = \Gamma_{\alpha,\beta}(\omega) + \Gamma_{\beta,\alpha}^*(\omega), \quad (\text{B.3.16a})$$

$$S_{\alpha,\beta}(\omega) = \frac{1}{2i} [\Gamma_{\alpha,\beta}(\omega) - \Gamma_{\beta,\alpha}^*(\omega)], \quad (\text{B.3.16b})$$

qui ont les propriétés suivantes :

$$\gamma_{\alpha,\beta}(\omega) + iS_{\alpha,\beta}(\omega) = \Gamma_{\alpha,\beta}(\omega), \quad (\text{B.3.17a})$$

$$\gamma_{\beta,\alpha}^*(\omega) = \gamma_{\alpha,\beta}(\omega), \quad (\text{B.3.17b})$$

$$S_{\beta,\alpha}^*(\omega) = S_{\alpha,\beta}(\omega). \quad (\text{B.3.17c})$$

Remarquons que l'équation (B.3.17a) n'est pas une décomposition classique sur le plan complexe puisque  $\gamma_{\alpha,\beta}$  et  $S_{\alpha,\beta}$  ne sont pas nécessairement réels. Il est aussi possible de montrer que  $\gamma_{\alpha,\beta}(\omega)$  est la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du réservoir :

$$\begin{aligned} \gamma_{\alpha,\beta}(\omega) &= \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(s) \hat{B}_\beta(0) \rangle + \frac{1}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} ds e^{-i\omega s} \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(0) \hat{B}_\beta(s) \rangle \\ &= \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(s) \hat{B}_\beta(0) \rangle, \end{aligned} \quad (\text{B.3.18})$$

où nous avons fait le changement de variable  $s' = -s$  dans la seconde intégrale et utilisé le fait que  $\langle \hat{B}_\alpha^\dagger(0) \hat{B}_\beta(-s') \rangle = \langle \hat{B}_\alpha^\dagger(s') \hat{B}_\beta(0) \rangle$  comme dans Eq. (B.3.14). En utilisant la décomposition de  $\Gamma_{\alpha,\beta}(\omega)$  Eq. (B.3.17a) nous pouvons réécrire l'équation maîtresse (B.3.15) sous la forme

$$\begin{aligned} \frac{d\hat{\rho}_S}{dt} &= \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega} (\gamma_{\alpha,\beta}(\omega) + iS_{\alpha,\beta}(\omega)) \left[ \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) - \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S(t) \right] \\ &+ \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega} (\gamma_{\alpha,\beta}^*(\omega) - iS_{\alpha,\beta}^*(\omega)) \left[ \hat{A}_\alpha(\omega) \hat{\rho}_S(t) \hat{A}_\beta^\dagger(\omega) - \hat{\rho}_S(t) \hat{A}_\beta^\dagger(\omega) \hat{A}_\alpha(\omega) \right]. \end{aligned} \quad (\text{B.3.19})$$

En faisant le changement d'indice  $\alpha \leftrightarrow \beta$  dans la seconde somme et en utilisant le fait que  $\gamma_{\beta,\alpha}^*(\omega) = \gamma_{\alpha,\beta}(\omega)$  et  $S_{\beta,\alpha}^*(\omega) = S_{\alpha,\beta}(\omega)$  (voir Eq. (B.3.17b) et (B.3.17c)), nous obtenons finalement l'équation maîtresse sous la forme de Lindblad :

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = -i[\hat{H}_{\text{LS}}, \hat{\rho}_S] + D[\hat{\rho}_S], \quad (\text{B.3.20})$$

avec

$$\hat{H}_{\text{LS}} = \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega} S_{\alpha,\beta}(\omega) \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) \hat{A}_\beta(\omega), \quad (\text{B.3.21a})$$

$$D[\hat{\rho}_S] = \sum_{\alpha,\beta} \sum_{\omega} \gamma_{\alpha,\beta}(\omega) \left[ \hat{A}_\beta(\omega) \hat{\rho}_S \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) - \frac{1}{2} \{ \hat{A}_\alpha^\dagger(\omega) \hat{A}_\beta(\omega), \hat{\rho}_S(t) \} \right], \quad (\text{B.3.21b})$$

où  $\{\hat{A}, \hat{B}\} = \hat{A}\hat{B} + \hat{B}\hat{A}$  est le crochet de Poisson de  $\hat{A}$  et  $\hat{B}$ . Le terme  $D[\hat{\rho}_S]$  dans Eq. (B.3.20) sera d'une importance majeure puisqu'il est responsable de l'existence d'un temps de vie fini (et donc d'un temps de cohérence fini) pour un système à deux niveaux en interaction avec le champ électromagnétique. Au contraire, le terme  $\hat{H}_{\text{LS}}$  sera toujours sans importance dans les problèmes considérés ici et nous ne le prendrons pas en compte dans ce manuscrit.

## B.4 En pratique : l'équation maîtresse dans le formalisme de Lindblad

Le but de cette partie est de résumer les hypothèses nécessaires et la méthodologie à suivre pour écrire l'équation maîtresse sous la forme de Lindblad pour un "petit" système  $S$  couplé à un réservoir.

1. Le hamiltonien du système total doit être de la forme  $\hat{H} = \hat{H}_S + \hat{H}_B + \hat{H}_I$  avec  $\hat{H}_S \in \mathcal{H}_S$ ,  $\hat{H}_B \in \mathcal{H}_B$  et  $\hat{H}_I \in \mathcal{H}_S \otimes \mathcal{H}_B$ . Remarquons que le hamiltonien d'interaction doit être de la forme  $\hat{H}_I = \sum_{\alpha} \hat{A}_{\alpha} \otimes \hat{B}_{\alpha}$  où  $\hat{A}_{\alpha}^{\dagger} = \hat{A}_{\alpha}$  and  $\hat{B}_{\alpha}^{\dagger} = \hat{B}_{\alpha}$ .
2. Les différents temps caractéristiques pour l'évolution temporelle du système total doivent être clairement identifiés : le temps de relaxation du réservoir  $\tau_B$ , le temps de relaxation du "petit" système  $\tau_r$  et le temps typique de l'évolution temporelle intrinsèque du "petit" système  $\tau_S$ .
3. L'interaction entre le système  $S$  et l'environnement doit être faible de manière à pouvoir écrire  $\hat{\rho}(t) = \hat{\rho}_S(t) \otimes \hat{\rho}_B(t)$  à tout instant (approximation de Born).
4. Le temps de relaxation du réservoir doit être petit devant celui de  $S$ ,  $\tau_B \ll \tau_R$ , afin de pouvoir faire l'approximation Markovienne.
5. L'équation suivante doit être vérifiée afin que la condition initiale de l'équation maîtresse soit garantie

$$\sum_{\alpha, \omega} \text{Tr}_B[\hat{B}_{\alpha}(t)\hat{\rho}_B] \times e^{-i\omega t}[\hat{A}_{\alpha}(\omega), \hat{\rho}_S(0)] = 0.$$

6. Finalement, le temps d'évolution intrinsèque du système  $S$  doit être petit devant son temps de relaxation,  $\tau_S \ll \tau_R$ , afin que l'approximation séculaire soit valide.

Si les conditions précédentes sont vérifiées, il faut commencer par trouver les opérateurs propres de  $\hat{H}_S$  définis Eq. (B.3.2) avant de calculer et  $D[\hat{\rho}_S]$  définis par l'Eq. (B.3.21). Nous obtenons alors l'équation maîtresse en représentation interaction :

$$\frac{d\hat{\rho}_S}{dt} = D[\hat{\rho}_S]. \quad (\text{B.4.1})$$

# Annexe C

## Fonctions de corrélation du champ électromagnétique

### Sommaire

---

<b>C.1 Calcul de la densité spectrale de couplage d'un dipôle au champ électromagnétique</b>	<b>171</b>
<b>C.2 Fonction de corrélation du champ électromagnétique</b>	<b>172</b>

---

Dans un premier temps, nous calculons la *densité spectrale* de couplage entre un dipôle électrique (modélisant une boîte quantique) et le champ électromagnétique. Le terme généralement utilisé étant simplement *densité spectrale*, nous nous permettons d'insister sur le fait qu'il est caractéristique du *couplage* entre le dipôle et son environnement. Par la suite, nous présentons le calcul de la fonction de corrélation du champ électromagnétique émis par une boîte quantique (BQ), qui est utile pour obtenir le temps de vie de l'état excité.

### C.1 Calcul de la densité spectrale de couplage d'un dipôle au champ électromagnétique

La densité spectrale de couplage entre un dipôle  $\mathbf{d}$  et le champ électromagnétique (apparaissant par exemple Eq. (C.2.7)) est défini comme [77]

$$J_{EM}(\omega) = \sum_{n,\lambda} |f_{n,\lambda}|^2 \delta(\omega - \omega_n), \quad (\text{C.1.1})$$

avec  $f_{n,\lambda} = -i\sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}} (\mathbf{e}_{n,\lambda} \cdot \mathbf{d})$  où  $L^3$  est le volume de quantification du champ électromagnétique, et  $\mathbf{e}_{n,\lambda}$  le vecteur polarisation du mode  $n$  de polarisation  $\lambda$ . Nous pouvons réécrire  $J_{EM}(\omega)$  sous une forme plus explicite :

$$J_{EM}(\omega) = \frac{\hbar}{2\varepsilon_0 V} \sum_{n,\lambda} \omega_n (\mathbf{e}_{n,\lambda} \cdot \mathbf{d})^2 \delta(\omega - \omega_n). \quad (\text{C.1.2})$$

Pour le calcul du produit scalaire  $\mathbf{e}_{n,\lambda} \cdot \mathbf{d}$ , nous nous plaçons dans un repère orthonormal direct en choisissant le dipôle  $\mathbf{d}$  selon l'axe  $z$  comme représenté Figure C.1. Considérons un photon émis dans

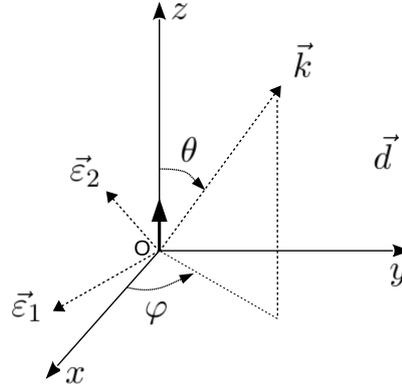


FIGURE C.1 – Pour le calcul de  $J_{EM}(\omega)$  nous choisissons le dipôle  $\mathbf{d}$  selon l'axe  $z$  et nous utilisons les coordonnées sphériques. Les vecteurs  $\boldsymbol{\varepsilon}_1$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}_2$  sont les vecteurs polarisation pour un photon émis dans le mode  $\mathbf{k}$ . Afin de simplifier le calcul, nous choisissons  $\boldsymbol{\varepsilon}_1$  dans le plan  $(xOy)$ .

un mode  $\mathbf{k}$  et décomposons son vecteur polarisation selon deux vecteurs  $\boldsymbol{\varepsilon}_1$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}_2$  tels que  $(\boldsymbol{\varepsilon}_1, \boldsymbol{\varepsilon}_2, \mathbf{k})$  forment un trièdre. En choisissant de plus  $\boldsymbol{\varepsilon}_1$  dans le plan  $xOy$  (ce qui est toujours possible), nous avons  $\boldsymbol{\varepsilon}_1 \cdot \mathbf{d} = 0$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}_2 \cdot \mathbf{d} = d \sin \theta$  ce qui permet d'écrire

$$J_{EM}(\omega) = \frac{\hbar d^2}{2\varepsilon_0 V} \sum_n \omega_n \sin^2 \theta_n \delta(\omega - \omega_n). \quad (\text{C.1.3})$$

En passant à la limite continue

$$\sum_n \rightarrow \frac{V}{(2\pi)^3} \iiint d\mathbf{k} = \frac{V}{(2\pi c)^3} \iiint d^3\tilde{\omega}, \quad (\text{C.1.4})$$

et en se plaçant en coordonnées sphériques, nous avons

$$J_{EM}(\omega) = \frac{\hbar d^2}{2\varepsilon_0 (2\pi c)^3} \int_0^{+\infty} d\tilde{\omega} \tilde{\omega}^2 \int_0^\pi d\theta \sin \theta \int_0^{2\pi} d\phi \tilde{\omega} \sin^2 \theta \delta(\omega - \tilde{\omega}), \quad (\text{C.1.5})$$

qui donne, après intégration, la densité spectrale de couplage entre le dipôle  $\mathbf{d}$  et le champ électromagnétique :

$$J_{EM}(\omega) = \frac{\hbar d^2 \omega^3}{6\pi^2 c^3 \varepsilon_0}. \quad (\text{C.1.6})$$

## C.2 Fonction de corrélation du champ électromagnétique

Nous allons calculer la fonction de corrélation du champ électromagnétique  $\mathcal{C}_{EM}(t) = \langle \hat{B}^\dagger(t) \hat{B}(0) \rangle$  qui nous permettra d'obtenir l'expression des coefficients  $\gamma(\pm\omega_X)$  qui apparaissent dans l'équation maîtresse (1.3.52). Dans cette optique, commençons par calculer l'expression de l'opérateur  $\hat{B}^\dagger$  en

représentation interaction (Eq. (1.3.50)) en utilisant l'expression de  $\hat{B}$  donnée Eq. (1.3.44b) :

$$\begin{aligned}\hat{B}^\dagger(t) &= e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}\hat{B}^\dagger e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t} \\ &= \sum_{n,\lambda} f_{n,\lambda}^* (e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t} - e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}\hat{a}_{n,\lambda} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}) \\ &= \sum_{n,\lambda} f_{n,\lambda}^* (\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t) - \hat{a}_{n,\lambda}(t)),\end{aligned}\quad (\text{C.2.1})$$

avec

$$\hat{a}_{n,\lambda}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}\hat{a}_{n,\lambda} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t}, \quad (\text{C.2.2})$$

et  $\hat{H}_{EM}$  étant donné par l'Eq. (1.3.40b). Le calcul de  $\hat{a}_{n,\lambda}(t)$  se fait grâce au théorème de Baker-Campbell-Hausdorff donné Eq. (B.3.7) de l'annexe B. En utilisant le fait que

$$\left[ \frac{i}{\hbar}\hat{H}_{EM}t, \hat{a}_{n,\lambda} \right] = it \sum_{n',\lambda'} \omega_{n'} \left[ \hat{a}_{n',\lambda'}^\dagger \hat{a}_{n',\lambda'}, \hat{a}_{n,\lambda} \right] = -i\omega_{n,t} \hat{a}_{n,\lambda}, \quad (\text{C.2.3})$$

nous obtenons

$$\hat{a}_{n,\lambda}(t) = \hat{a}_{n,\lambda} e^{-i\omega_{n,t}t}. \quad (\text{C.2.4})$$

L'opérateur  $\hat{B}^\dagger(t)$  donné par l'Eq. (C.2.1) devient alors

$$\hat{B}^\dagger(t) = \sum_{n,\lambda} f_{n,\lambda}^* \left( \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger e^{i\omega_{n,t}t} - \hat{a}_{n,\lambda} e^{-i\omega_{n,t}t} \right), \quad (\text{C.2.5})$$

et la fonction de corrélation du champ électromagnétique s'écrit

$$\begin{aligned}\mathcal{C}_{EM}(t) &= \langle \hat{B}^\dagger(t) \hat{B}(0) \rangle \\ &= \sum_{n,\lambda} \sum_{n',\lambda'} f_{n,\lambda}^* f_{n',\lambda'} \left[ \langle \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n',\lambda'} \rangle e^{i\omega_{n,t}t} - \langle \hat{a}_{n,\lambda} \hat{a}_{n',\lambda'}^\dagger \rangle e^{i\omega_{n',\lambda'}t} \right. \\ &\quad \left. + \langle \hat{a}_{n,\lambda} \hat{a}_{n',\lambda'}^\dagger \rangle e^{-i\omega_{n,t}t} - \langle \hat{a}_{n,\lambda} \hat{a}_{n',\lambda'} \rangle e^{-i\omega_{n',\lambda'}t} \right].\end{aligned}\quad (\text{C.2.6})$$

En supposant le champ électromagnétique dans son état fondamental (c'est-à-dire le vide électromagnétique), les valeurs moyennes apparaissant dans l'équation précédente sont nulles sauf  $\langle \hat{a}_{n,\lambda} \hat{a}_{n',\lambda'}^\dagger \rangle$  qui vaut  $\delta_{n,n'} \delta_{\lambda,\lambda'}$ . Nous avons donc

$$\begin{aligned}\mathcal{C}_{EM}(t) &= \sum_{n,\lambda} |f_{n,\lambda}|^2 e^{-i\omega_{n,t}t} \\ &= \int_0^{+\infty} d\omega \sum_{n,\lambda} |f_{n,\lambda}|^2 \delta(\omega - \omega_n) e^{-i\omega t} \\ &= \int_0^{+\infty} d\omega J_{EM}(\omega) e^{-i\omega t},\end{aligned}\quad (\text{C.2.7})$$

où nous avons utilisé le fait que  $\omega_n > 0$  pour tout  $n$  et noté  $J_{EM}(\omega) = \sum_{n,\lambda} |f_{n,\lambda}|^2 \delta(\omega - \omega_n)$  la densité spectrale de couplage au champ électromagnétique. Nous avons montré précédemment Eq. (C.1.6) que  $J_{EM}(\omega) = \hbar d^2 \omega^3 / 6\pi^2 c^3 \varepsilon_0$  ce qui donne pour la fonction de corrélation

$$\mathcal{C}_{EM}(t) = \frac{\hbar d^2}{6\pi^2 c^3 \varepsilon_0} \int_0^{+\infty} d\omega \omega^3 e^{-i\omega t}. \quad (\text{C.2.8})$$

**Remarque :**

Dans le livre *Photons et Atomes - Introduction à l'Electrodynamique Quantique* [79] (paragraphe III-C-3 et complément CIII), les auteurs montrent que dans le cas du vide électromagnétique, la fonction de corrélation du champ décroît sur un temps infiniment court. Ceci justifie l'utilisation de l'approximation Markovienne nécessaire pour l'utilisation du formalisme de Lindblad présenté dans l'annexe B.

Nous pouvons aussi remarquer l'absence de temps caractéristique dans l'expression (C.2.8) de la fonction de corrélation du champ ce qui est en accord avec un temps de corrélation tendant vers zéro. Nous verrons dans l'annexe G que la fonction de corrélation du bain de phonons fait apparaître un temps caractéristique correspondant au temps de relaxation du réservoir.

## Annexe D

# Champ émis par une boîte quantique

Dans le travail présenté dans ce manuscrit, il est nécessaire de calculer des fonctions de corrélation du champ émis par une boîte quantique (BQ). La première étape de ce calcul, est d'être en mesure d'écrire l'expression du champ, pour un dipôle en interaction avec les différents modes du champ électromagnétique, supposé dans son état fondamental [124]. Nous travaillerons en représentation Heisenberg (voir annexe A) et un opérateur dans cette représentation sera noté avec une dépendance temporelle et sans tilde :  $\hat{O}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\hat{O}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}$ , de manière à le différencier du même opérateur en représentation Schrödinger  $\hat{O}$  ou en représentation interaction  $\hat{\hat{O}}(t)$ .

Considérons le hamiltonien de la partie 1.3.3.1 où nous traitons quantiquement le système à deux niveaux ainsi que le champ électromagnétique :

$$\hat{H} = \hat{H}_{\text{QD}} + \hat{H}_{\text{EM}} + \hat{H}_{\text{int}}, \quad (\text{D.0.1})$$

avec

$$\hat{H}_{\text{QD}} = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z, \quad (\text{D.0.2a})$$

$$\hat{H}_{\text{EM}} = \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda}, \quad (\text{D.0.2b})$$

$$\hat{H}_{\text{int}} = \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}), \quad (\text{D.0.2c})$$

où  $f_{n,\lambda} = -i\sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}}(\mathbf{e}_{n,\lambda} \cdot \mathbf{d})$  avec  $L^3$  le volume de quantification du champ électromagnétique et où nous n'avons gardé que les termes conservant l'énergie dans  $\hat{H}_{\text{int}}$  puisque nous nous intéressons aux champ émis par la boîte. En représentation Heisenberg, le champ émis par une BQ est de la forme (1.3.42)

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}(t) &= \hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(+)}(t) + \hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(-)}(t) \quad \text{avec} \quad \hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(-)}(t) = \left(\hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(+)}(t)\right)^\dagger \\ &= \sum_{n,\lambda} \varepsilon_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t) \mathbf{e}_{n,\lambda}, \end{aligned} \quad (\text{D.0.3})$$

où  $\varepsilon_n = -i\sqrt{\frac{\hbar\omega_n}{2\varepsilon_0 L^3}}$ . Remarquons que les opérateurs  $\hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(+)}(t)$  et  $\hat{\mathbf{E}}_{\text{QD}}^{(-)}(t)$  correspondent à l'annihilation et la création d'un photon respectivement. L'opérateur  $\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t)$  est solution de l'équation de

Heisenberg (A.2.2)

$$\begin{aligned}
\frac{d\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger}{dt} &= \frac{i}{\hbar}[\hat{H}, \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t)] \\
&= \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}[\hat{H}, \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger]e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t} \\
&= \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\left([\hat{H}_{\text{EM}}, \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger] + [\hat{H}_{\text{int}}, \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger]\right)e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t} \\
&= \frac{i}{\hbar}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\left(\hbar\omega_n\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger + f_{n,\lambda}\hat{\sigma}^\dagger\right)e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t} \\
&= i\omega_n\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t) + \frac{i}{\hbar}f_{n,\lambda}\hat{\sigma}^\dagger(t).
\end{aligned} \tag{D.0.4}$$

Cette équation s'intègre en

$$\hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(t) = \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(0)e^{i\omega_n t} + \frac{i}{\hbar}f_{n,\lambda}\int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t')e^{-i\omega_n(t'-t)}, \tag{D.0.5}$$

et nous obtenons l'expression du champ électrique en représentation Heisenberg

$$\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) = \sum_{n,\lambda} \varepsilon_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger(0)e^{i\omega_n t} \mathbf{e}_{n,\lambda} + \frac{i}{\hbar} \sum_{n,\lambda} \varepsilon_n f_{n,\lambda} \int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t')e^{-i\omega_n(t'-t)} \mathbf{e}_{n,\lambda}. \tag{D.0.6}$$

Le premier terme de cette équation correspond au champ en l'absence de BQ, que nous avons supposé être le vide électromagnétique. En conséquence, il ne contribue pas aux fonctions de corrélation que nous calculerons et sera ignoré dans la suite, de telle sorte que

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) &= \frac{i}{\hbar} \sum_{n,\lambda} \varepsilon_n f_{n,\lambda} \mathbf{e}_{n,\lambda} \int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t')e^{-i\omega_n(t'-t)} \\
&= \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \mathbf{F}(\omega) \int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t')e^{-i\omega(t'-t)},
\end{aligned} \tag{D.0.7}$$

où  $\mathbf{F}(\omega) = \sum_{n,\lambda} \varepsilon_n f_{n,\lambda} \delta(\omega - \omega_n) \mathbf{e}_{n,\lambda}$  caractérise le couplage entre la BQ et le champ électromagnétique. Si l'interaction avec le champ électromagnétique avait été négligée, l'opérateur  $\hat{\sigma}^\dagger$  en représentation Heisenberg s'écrirait  $\hat{\sigma}^\dagger(t') = \hat{\sigma}^\dagger e^{i\omega_x t'}$ , ce qui aurait pour conséquence de faire apparaître un  $\delta(\omega - \omega_x)$  qui fixerait l'énergie. Comme nous le montrons dans la partie 1.3.3.6, la prise en compte du couplage au champ électromagnétique a pour conséquence d'élargir la raie d'un facteur  $\Delta\omega \sim 1/T_1$ , largeur sur laquelle nous pouvons montrer, en suivant une procédure similaire à celle décrite dans l'annexe C.1, que  $\mathbf{F}(\omega) = F(\omega)\mathbf{e}_{QD}$  est approximativement constant,  $F(\omega) \simeq F$ . Nous avons alors

$$\begin{aligned}
\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) &= \frac{i}{\hbar} F \mathbf{e}_{QD} \int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t') \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{i\omega(t'-t)} \\
&= \frac{i}{\hbar} 2\pi F \mathbf{e}_{QD} \int_0^t dt' \hat{\sigma}^\dagger(t') \delta(t' - t),
\end{aligned} \tag{D.0.8}$$

et nous en déduisons finalement que le champ émis par un BQ est de la forme

$$\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) = K \hat{\sigma}^\dagger(t) \mathbf{e}_{QD}, \tag{D.0.9}$$

où  $K$  est une constante et  $\mathbf{e}_{QD}$  le vecteur unitaire caractérisant la polarisation de l'émission de la BQ.

# Annexe E

## Théorème de Wiener-Khinchin

### Sommaire

---

<b>E.1 Définitions</b> . . . . .	177
<b>E.2 Théorème</b> . . . . .	177
<b>E.3 Interprétation physique</b> . . . . .	178
<b>E.4 Autre formulation du théorème</b> . . . . .	178

---

Nous démontrons ici le théorème de Wiener-Khinchin [81, 82] qui permet d'obtenir une expression du spectre de luminescence émis par une boîte quantique (BQ). Il relie la densité spectrale d'énergie du champ  $S(\omega)$  à la fonction de corrélation du champ émis par la boîte.

### E.1 Définitions

Soient  $f$  et  $g$  deux fonctions de  $\mathbb{R}$  dans  $\mathbb{C}$ . Nous notons  $\mathcal{F}$  l'application qui à une fonction  $f$  associe sa transformée de Fourier :

$$\mathcal{F}[f] : \omega \mapsto \tilde{f}(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt f(t) e^{i\omega t}. \quad (\text{E.1.1})$$

Nous définissons aussi  $\mathcal{F}^{-1}$  l'application transformée de Fourier inverse

$$\mathcal{F}^{-1}[\tilde{f}] : t \mapsto f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \tilde{f}(\omega) e^{-i\omega t}. \quad (\text{E.1.2})$$

Pour finir, nous appelons produit de convolution de  $f$  et  $g$  l'opération

$$(f * g)(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt' f(t') g(t - t'), \quad (\text{E.1.3})$$

qui a la propriété suivante :

$$\mathcal{F}[f * g] = \mathcal{F}[f] \times \mathcal{F}[g]. \quad (\text{E.1.4})$$

### E.2 Théorème

Nous considérons deux fonctions de  $\mathbb{R}$  dans  $\mathbb{C}$  que nous notons  $f$  et  $g$  et telles que  $g(t) = f^*(-t)$ . Nous montrons alors facilement que  $\tilde{g}(\omega) = \tilde{f}^*(\omega)$  et nous posons

$$S(\omega) = \tilde{f}(\omega) \times \tilde{g}(\omega) = |\tilde{f}(\omega)|^2. \quad (\text{E.2.1})$$

La propriété du produit de convolution Eq (E.1.4) donne le théorème de Wiener-Khinchin qui s'écrit

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \mathcal{C}(\tau) e^{i\omega\tau}, \quad (\text{E.2.2})$$

où  $\mathcal{C}(\tau)$  est le produit de convolution de  $f$  et  $g$  qui s'exprime en utilisant Eq (E.1.3) et en faisant le changement de variable  $t = t' - \tau$

$$\mathcal{C}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt f^*(t) f(t + \tau). \quad (\text{E.2.3})$$

### E.3 Interprétation physique

Dans ce manuscrit, nous souhaitons calculer le spectre émis par un dipôle dont le champ électrique rayonné est traité quantiquement. Dans ce cas, la fonction  $f$  de la partie précédente est remplacée par l'opérateur champ électrique et la moyenne quantique, notée  $\langle \dots \rangle$ , doit être prise avant de calculer l'intégrale sur  $t$  dans l'expression (E.2.3) de la fonction de corrélation. De plus, il est utile de remarquer qu'un champ électromagnétique est souvent difficile à mesurer optiquement puisque la plupart des observations sont liées à l'absorption de photons, par un photodétecteur par exemple [117, 118, 119]. Le spectre mesuré par nos appareils de mesure est donc relié à la fonction de corrélation, où nous avons choisi  $f(t) \equiv \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t)$ . Dans ce cas, l'Eq. (D.0.3) montre que  $\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t)\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t) \sim \hat{a}^\dagger\hat{a}$  qui a la forme de l'opérateur nombre, et qui représente donc le nombre de photons compté par l'appareil. La fonction de corrélation du champ mesurée s'écrit donc

$$\mathcal{C}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t)\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t + \tau) \rangle. \quad (\text{E.3.1})$$

En remarquant qu'en régime pulsé le champ est nul avant que le laser n'excite la boîte, nous avons  $\langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t)\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t + \tau) \rangle = 0$  pour  $t < 0$ . La fonction de corrélation du champ mesurée s'écrit donc en réalité

$$\mathcal{C}(\tau) = \int_0^{+\infty} dt \langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t)\hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t + \tau) \rangle \quad (\text{E.3.2})$$

et le spectre s'obtient en utilisant l'Eq. (E.2.2).

### E.4 Autre formulation du théorème

Le théorème de Wiener-Khinchin peut être formulé d'une manière différente, qu'il est utile d'explicitier ici, puisque c'est celle que nous utiliserons pour le calcul du spectre de luminescence. L'idée consiste à séparer l'intégrale (E.2.2) en deux termes de manière à écrire le spectre comme la somme de deux quantités complexes conjuguées l'une de l'autre. En effet, l'Eq. (E.2.2) s'écrit

$$\begin{aligned} S(\omega) &= \int_{-\infty}^0 d\tau \mathcal{C}(\tau) e^{i\omega\tau} + \int_0^{+\infty} d\tau \mathcal{C}(\tau) e^{i\omega\tau} \\ &= \int_0^{+\infty} d\tau \mathcal{C}(-\tau) e^{-i\omega\tau} + \int_0^{+\infty} d\tau \mathcal{C}(\tau) e^{i\omega\tau}, \end{aligned} \quad (\text{E.4.1})$$

et nous remarquons que

$$\begin{aligned}
\mathcal{C}(-\tau) &= \int_0^{+\infty} dt \langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t) \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t-\tau) \rangle \\
&= \int_0^{+\infty} dt' \langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t'+\tau) \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t') \rangle \\
&= \mathcal{C}^*(\tau),
\end{aligned} \tag{E.4.2}$$

où dans le passage de la première à la deuxième ligne, nous avons fait le changement de variable  $t' = t - \tau$ . Nous en concluons donc que

$$S(\omega) = \mathcal{S}(\omega) + \mathcal{S}^*(\omega) \quad \text{avec} \quad \mathcal{S}(\omega) = \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(-)}(t+\tau) \hat{\mathbf{E}}_{QD}^{(+)}(t) \rangle e^{-i\omega\tau}. \tag{E.4.3}$$



# Annexe F

## Théorème de la régression quantique

### Sommaire

---

<b>F.1</b>	<b>Idée générale</b>	181
<b>F.2</b>	<b>Théorème</b>	182
<b>F.3</b>	<b>Guide pour l'utilisation du théorème</b>	183
<b>F.4</b>	<b>Calcul de la fonction de corrélation d'une boîte quantique en interaction avec le champ électromagnétique</b>	184

---

### F.1 Idée générale

Pour décrire l'évolution temporelle d'un système de hamiltonien  $\hat{H}$  en physique quantique, nous sommes souvent amenés à calculer des valeurs moyennes ou des fonctions de corrélations. Dans le premier cas, la valeur moyenne d'un opérateur  $\hat{A}$  à l'instant  $t$  est donnée par

$$\langle \hat{A}(t) \rangle = \text{Tr}[\hat{A}(t)\hat{\rho}], \quad (\text{F.1.1})$$

où  $\hat{A}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\hat{A}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}$  est l'expression de l'opérateur  $\hat{A}$  en représentation Heisenberg (voir annexe A.2). En utilisant l'invariance de la trace sous permutation circulaire nous pouvons réécrire la valeur moyenne de  $\hat{A}$  sous la forme

$$\langle \hat{A}(t) \rangle = \text{Tr}[\hat{A}\hat{\rho}(t)], \quad (\text{F.1.2})$$

avec  $\hat{\rho}(t) = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\hat{\rho}e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}$  la matrice densité du système en représentation Schrödinger. L'équation maîtresse régissant l'évolution temporelle de la matrice densité, nous pouvons en la résolvant, calculer n'importe quelle valeur moyenne.

Dans le cas où nous souhaitons calculer une fonction de corrélation s'écrivant

$$\begin{aligned} \mathcal{C}(t, \tau) &= \langle \hat{A}(t)\hat{B}(t + \tau) \rangle \\ &= \text{Tr}[\hat{A}(t)\hat{B}(t + \tau)\hat{\rho}], \end{aligned} \quad (\text{F.1.3})$$

le problème est plus complexe puisque nous ne pouvons plus appliquer la méthode précédente et qu'un calcul direct est rarement envisageable, surtout si nous considérons un système  $S$  couplé à

un réservoir  $B$ . Dans ce cas, le théorème de la régression quantique consiste à écrire la fonction de corrélation sous la forme

$$\mathcal{C}(t, \tau) = \text{Tr}_s[\hat{B}\hat{\Lambda}(t, \tau)], \quad (\text{F.1.4})$$

avec  $\hat{\Lambda}(t, \tau)$  la matrice densité réduite effective, solution de l'équation maîtresse pour la variable  $\tau$ . Nous pouvons alors connaître la dépendance en  $t$  et  $\tau$  de  $\Lambda$ , ce qui permet de calculer la fonction de corrélation cherchée.

## F.2 Théorème

La procédure décrite ici pour la démonstration du théorème est tirée des références [81, 78]. Considérons deux opérateurs  $\hat{A}$  et  $\hat{B}$  agissant sur un système  $S$  en interaction avec son environnement décrit par un réservoir noté  $B$ . Nous noterons  $\hat{\rho}$  la matrice densité du système total  $\{S + B\}$  et  $\hat{\rho}_s = \text{Tr}_B[\hat{\rho}]$  la matrice densité réduite du système  $S$  solution de l'équation maîtresse

$$\frac{\partial \hat{\rho}_s}{\partial \tau} = \mathcal{L}[\hat{\rho}_s]. \quad (\text{F.2.1})$$

Nous cherchons ici à calculer la fonction de corrélation

$$\begin{aligned} \mathcal{C}(t, \tau) &= \langle \hat{A}(t)\hat{B}(t + \tau) \rangle \\ &= \text{Tr}[\hat{A}(t)\hat{B}(t + \tau)\hat{\rho}]. \end{aligned} \quad (\text{F.2.2})$$

Nous définissons  $\hat{U}(t, t') = e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}(t-t')}$  l'opérateur unitaire d'évolution temporelle du système qui a les propriétés

$$\hat{A}(t) = \hat{U}^\dagger(t, 0)\hat{A}\hat{U}(t, 0), \quad (\text{F.2.3a})$$

$$\hat{U}^\dagger(t, t') = \hat{U}(t', t), \quad (\text{F.2.3b})$$

$$\hat{U}(t, t')\hat{U}(t', t'') = \hat{U}(t, t''). \quad (\text{F.2.3c})$$

La fonction de corrélation s'écrit donc

$$\begin{aligned} \mathcal{C}(t, \tau) &= \text{Tr}[\hat{U}^\dagger(t, 0)\hat{A}\hat{U}(t, 0)\hat{U}^\dagger(t + \tau, 0)\hat{B}\hat{U}(t + \tau, 0)\hat{\rho}] \\ &= \text{Tr}[\hat{B}\hat{U}(t + \tau, 0)\hat{\rho}\hat{U}^\dagger(t, 0)\hat{A}\hat{U}(t, 0)\hat{U}^\dagger(t + \tau, 0)]. \end{aligned} \quad (\text{F.2.4})$$

En injectant la relation  $\mathbf{1} = \hat{U}(0, t)\hat{U}^\dagger(0, t) = \hat{U}(0, t)\hat{U}(t, 0)$  entre  $\hat{U}(t + \tau, 0)$  et  $\hat{\rho}$  dans l'équation précédente et en utilisant le fait que

$$\hat{U}(t, 0)\hat{U}^\dagger(t + \tau, 0) = \hat{U}(t, t + \tau) = \hat{U}^\dagger(t + \tau, t), \quad (\text{F.2.5a})$$

$$\hat{U}(t, 0)\hat{\rho}\hat{U}^\dagger(t, 0) = \hat{\rho}(t), \quad (\text{F.2.5b})$$

nous obtenons

$$\mathcal{C}(t, \tau) = \text{Tr}[\hat{B}\hat{U}(t + \tau, t)\hat{\rho}(t)\hat{A}\hat{U}^\dagger(t + \tau, t)]. \quad (\text{F.2.6})$$

En définissant la matrice densité réduite effective  $\hat{\Lambda}$  telle que

$$\hat{\Lambda}(t, \tau) = \text{Tr}_B[\hat{U}(t + \tau, t)\hat{\rho}(t)\hat{A}\hat{U}^\dagger(t + \tau, t)], \quad (\text{F.2.7})$$

la fonction de corrélation s'écrit

$$\mathcal{C}(t, \tau) = \text{Tr}_s [\hat{B} \hat{\Lambda}(t, \tau)]. \quad (\text{F.2.8})$$

Nous remarquons que la matrice densité réduite effective  $\hat{\Lambda}$  est définie d'une manière similaire à la matrice densité réduite du système  $S$  qui s'écrit  $\hat{\rho}_s(t) = \text{Tr}_B [\hat{U}(t, 0) \hat{\rho} \hat{U}^\dagger(t, 0)]$ . Il est alors possible de montrer [159] que  $\hat{\Lambda}(t, \tau)$  obéit à la même équation maîtresse que  $\hat{\rho}_s$  pour la variable  $\tau$  et donc que

$$\frac{\partial \hat{\Lambda}}{\partial \tau} = \mathcal{L}[\hat{\Lambda}]. \quad (\text{F.2.9})$$

La résolution de cette équation nous permet de connaître la dépendance en  $\tau$  de  $\hat{\Lambda}(t, \tau)$ , la dépendance en  $t$  s'obtenant en utilisant la condition initiale à  $\tau = 0$  :

$$\begin{aligned} \hat{\Lambda}(t, 0) &= \text{Tr}_B [\hat{U}(t, t) \hat{\rho}(t) \hat{A} \hat{U}^\dagger(t, t)] \\ &= \text{Tr}_B [\hat{\rho}(t) \hat{A}] \\ &= \hat{\rho}_s(t) \hat{A}, \end{aligned} \quad (\text{F.2.10})$$

puisque  $\hat{A}$  n'agit que sur  $S$ . L'évolution temporelle de la matrice densité réduite effective  $\hat{\Lambda}(t, \tau)$  est alors complètement connue et nous sommes en mesure de calculer la fonction de corrélation définie par l'Eq. (F.2.8).

**Remarque :**

Nous pouvons remarquer que dans le cas plus simple où le système  $S$  n'est pas couplé à un réservoir le théorème reste valable et la matrice densité réduite effective  $\hat{\Lambda}$  est définie telle que

$$\hat{\Lambda}(t, \tau) = \hat{U}(t + \tau, t) \hat{\rho}(t) \hat{A} \hat{U}^\dagger(t + \tau, t) \quad (\text{F.2.11})$$

où  $\hat{\rho}$  est la matrice densité du système  $S$ .

### F.3 Guide pour l'utilisation du théorème

En pratique, l'utilisation du théorème de la régression quantique pour le calcul d'une fonction de corrélation  $\mathcal{C}(t, \tau) = \langle \hat{A}(t) \hat{B}(t + \tau) \rangle$  se fait en trois étapes<sup>1</sup> :

1. Nous trouvons la dépendance en  $\tau$  de la matrice densité réduite effective  $\hat{\Lambda}$  en résolvant

$$\frac{\partial}{\partial \tau} \hat{\Lambda}(t, \tau) = \mathcal{L}[\hat{\Lambda}(t, \tau)] \quad \text{avec} \quad \hat{\Lambda}(t, \tau) = \begin{pmatrix} \Lambda_{11}(t, \tau) & \Lambda_{12}(t, \tau) \\ \Lambda_{21}(t, \tau) & \Lambda_{22}(t, \tau) \end{pmatrix}. \quad (\text{F.3.1})$$

2. Nous trouvons la dépendance en  $t$  de  $\hat{\Lambda}$  en utilisant le fait que  $\hat{\Lambda}(t, \tau = 0) = \hat{\rho}(t) \hat{A}$ , la dépendance temporelle de  $\hat{\rho}$  étant obtenue en résolvant

$$\frac{\partial}{\partial t} \hat{\rho}(t) = \mathcal{L}[\hat{\rho}(t)] \quad \text{avec} \quad \hat{\rho}(t) = \begin{pmatrix} \rho_{11}(t) & \rho_{12}(t) \\ \rho_{21}(t) & \rho_{22}(t) \end{pmatrix}. \quad (\text{F.3.2})$$

3. Nous calculons finalement la fonction de corrélation grâce à la formule

$$\mathcal{C}(t, \tau) = \text{Tr}_s [\hat{B} \hat{\Lambda}(t, \tau)]. \quad (\text{F.3.3})$$

---

1. Pour  $\hat{A}$  et  $\hat{B}$  agissant sur le système d'intérêt  $S$  et pas sur le réservoir.

## F.4 Calcul de la fonction de corrélation d'une boîte quantique en interaction avec le champ électromagnétique

Nous souhaitons calculer la fonction de corrélation du champ émis par une BQ couplée uniquement au champ électromagnétique. Cette fonction de corrélation s'écrit  $\langle \hat{\sigma}^\dagger(t) \hat{\sigma}(t + \tau) \rangle$  et apparaît dans le calcul du spectre émis par la boîte Eq.(1.3.65). Pour ce calcul, nous utilisons le théorème de la régression quantique en suivant la méthodologie présentée dans la partie F.3 et nous rappelons que  $\hat{\sigma} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}$  et  $\hat{\sigma}^\dagger = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$ .

### 1) Dépendance en $\tau$ de $\hat{\Lambda}(t, \tau)$

Nous commençons par trouver la dépendance en  $\tau$  de  $\hat{\Lambda}(t, \tau)$  en utilisant le fait que  $\hat{\Lambda}$  est solution de la même équation maîtresse que  $\hat{\rho}$  donnée Eq. (1.3.33) et rappelé ci-dessous.

$$\begin{cases} \frac{d\rho_{11}}{dt} + \Gamma\rho_{11} = \Gamma, \\ \frac{d\rho_{12}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} - i\omega_X\right)\rho_{12} = 0, \\ \frac{d\rho_{21}}{dt} + \left(\frac{\Gamma}{2} + i\omega_X\right)\rho_{21} = 0, \\ \frac{d\rho_{22}}{dt} + \Gamma\rho_{22} = 0. \end{cases} \quad (\text{F.4.1a})$$

Les éléments de matrice de  $\Lambda$  sont donc de la forme

$$\begin{cases} \Lambda_{11}(t, \tau) = 1 - C_{11}(t) e^{-\Gamma\tau}, \\ \Lambda_{12}(t, \tau) = C_{12}(t) e^{-(\frac{\Gamma}{2} - i\omega_X)\tau}, \\ \Lambda_{21}(t, \tau) = C_{21}(t) e^{-(\frac{\Gamma}{2} + i\omega_X)\tau}, \\ \Lambda_{22}(t, \tau) = C_{22}(t) e^{-\Gamma\tau}. \end{cases} \quad (\text{F.4.2a})$$

### 2) Dépendance en $t$ de $\hat{\Lambda}(t, \tau)$

La dépendance en  $t$  de  $\hat{\Lambda}$  est obtenue en utilisant le fait que  $\hat{\Lambda}(t, \tau = 0) = \hat{\rho}(t)\hat{\sigma}^\dagger$ , la dépendance temporelle de  $\hat{\rho}$  étant obtenue en résolvant le système d'équation (F.4.1). Nous trouvons que

$$\hat{\rho}(t)\hat{\sigma}^\dagger = \begin{pmatrix} \rho_{12}(t) & 0 \\ \rho_{22}(t) & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{F.4.3})$$

avec  $\rho_{12}(t) = 0$  et  $\rho_{22}(t) = e^{-\Gamma t}$  puisque nous considérons que le système se trouve initialement dans son état excité et donc que  $\hat{\rho}(t = 0) = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$ . Nous en déduisons que

$$C_{11}(t) = 1, \quad (\text{F.4.4a})$$

$$C_{12}(t) = C_{22}(t) = 0, \quad (\text{F.4.4b})$$

$$C_{21}(t) = e^{-\Gamma t}, \quad (\text{F.4.4c})$$

ce qui permet d'obtenir les dépendances temporelles de  $\hat{\Lambda}$  :

$$\begin{cases} \Lambda_{11}(t, \tau) = 1 - e^{-\Gamma\tau}, \\ \Lambda_{12}(t, \tau) = 0, \\ \Lambda_{21}(t, \tau) = e^{-\Gamma t} e^{-(\frac{\Gamma}{2} + i\omega_X)\tau}, \\ \Lambda_{22}(t, \tau) = 0. \end{cases} \quad (\text{F.4.5a})$$

### 3) Calcul de $\langle \hat{\sigma}^\dagger(t) \hat{\sigma}(t + \tau) \rangle$

Enfin, la fonction de corrélation peut être calculée :

$$\begin{aligned} \langle \hat{\sigma}^\dagger(t) \hat{\sigma}(t + \tau) \rangle &= \text{Tr}_s[\hat{\sigma} \hat{\Lambda}(t, \tau)] \\ &= \text{Tr} \begin{pmatrix} \Lambda_{21}(t, \tau) & \Lambda_{22}(t, \tau) \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (\text{F.4.6})$$

$$= \Lambda_{21}(t, \tau), \quad (\text{F.4.7})$$

et nous obtenons donc finalement

$$\langle \hat{\sigma}^\dagger(t) \hat{\sigma}(t + \tau) \rangle = e^{-i\omega_X\tau} e^{-\Gamma t - \frac{\Gamma}{2}\tau}. \quad (\text{F.4.8})$$



# Annexe G

## Couplage aux phonons et fonctions de corrélation

### Sommaire

---

<b>G.1 Couplage linéaire</b> . . . . .	<b>187</b>
G.1.1 Calcul de la densité spectrale de couplage électron-phonon du <b>1<sup>er</sup></b> ordre . . .	187
G.1.2 Fonction de corrélation . . . . .	188
G.1.2.1 Utilisation des états cohérents . . . . .	189
G.1.2.2 Calcul de la fonction de corrélation . . . . .	189
<b>G.2 Couplage quadratique</b> . . . . .	<b>190</b>
G.2.1 Calcul de la densité spectrale de couplage électron-phonon du <b>2<sup>ème</sup></b> ordre .	190
G.2.2 Fonction de corrélation . . . . .	192
G.2.3 Calcul du coefficient de déphasage pur . . . . .	193

---

Dans cette annexe, nous calculons les densités spectrales [77] pour les couplages, linéaire et quadratique, entre une BQ, modélisée comme un système à deux niveaux, et un bain de phonons. Par la suite, nous calculons les fonctions de corrélations du bain de phonons pour les deux ordres.

### G.1 Couplage linéaire

#### G.1.1 Calcul de la densité spectrale de couplage électron-phonon du 1<sup>er</sup> ordre

Comme dans le cas du couplage au champ électromagnétique traité dans l'annexe C, nous calculons ici la densité spectrale de couplage (linéaire) de la boîte au bain de phonon  $J_{ph}^{(1)}(\nu) = \sum_{\mathbf{k}} |g_{\mathbf{k}}|^2 \delta(\nu - \nu_{\mathbf{k}})$  [77], qui caractérise l'intensité du couplage en fonction de l'énergie des phonons. Nous rappelons que le hamiltonien effectif d'interaction avec les phonons du premier ordre donné Eq. (3.3.7) s'écrit,

$$\hat{H}_{e-ph}^{(1)} = |X\rangle\langle X| \sum_k g_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{-\mathbf{k}}), \quad (\text{G.1.1})$$

avec

$$\begin{aligned} g_{\mathbf{k}} &= M_{XX}^{\mathbf{k}} - M_{00}^{\mathbf{k}} \\ &= \langle X | M_{\mathbf{k}} \hat{\rho}(\mathbf{k}) | X \rangle - \langle 0 | M_{\mathbf{k}} \hat{\rho}(\mathbf{k}) | 0 \rangle, \end{aligned} \quad (\text{G.1.2})$$

où  $M_{\mathbf{k}} = v(\mathbf{k})\sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}}$  et  $\hat{\rho}(\mathbf{k}) = \sum_{j,j'} \hat{c}_j^\dagger \hat{c}_{j'} \int d\mathbf{r} \psi_j^*(\mathbf{r})\psi_{j'}(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ . En remarquant que les états  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  correspondent à un électron dans la bande de valence et un électron dans la bande de conduction respectivement, nous obtenons

$$M_{XX}^{\mathbf{k}} = D_c \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \int d\mathbf{r} |\psi_c(\mathbf{r})|^2 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (\text{G.1.3a})$$

$$M_{00}^{\mathbf{k}} = D_v \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \int d\mathbf{r} |\psi_v(\mathbf{r})|^2 e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (\text{G.1.3b})$$

où  $\psi_{v,c}(\mathbf{r})$  sont les fonctions d'onde d'un électron dans les bandes valence et de conduction, et où nous avons supposé que le potentiel de déformation ne dépend pas de  $\mathbf{k}$  comme discuté dans la partie 3.3.1.1. En supposant un potentiel de confinement parabolique à symétrie sphérique pour la BQ, les fonctions d'onde s'écrivent [160]  $\psi_a(\mathbf{r}) = (d_a^2\pi)^{-3/4} \exp(-r^2/2d_a^2)$  où  $d_a$  est la taille caractéristique du confinement, de l'ordre de la taille de la boîte. En séparant les intégrales (G.1.3) en trois contributions selon  $x$ ,  $y$  et  $z$ , nous obtenons

$$M_{XX}^{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} D_c e^{-\left(\frac{d_c k}{2}\right)^2}, \quad (\text{G.1.4a})$$

$$M_{00}^{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} D_v e^{-\left(\frac{d_v k}{2}\right)^2}. \quad (\text{G.1.4b})$$

En supposant une relation de dispersion linéaire pour les phonons,  $\nu_{\mathbf{k}} = c_s|\mathbf{k}|$ , nous obtenons l'expression de  $g_{\mathbf{k}}$ ,

$$g_{\mathbf{k}} = \sqrt{\frac{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \left( D_c e^{-\left(\frac{d_c \nu_{\mathbf{k}}}{2c_s}\right)^2} - D_v e^{-\left(\frac{d_v \nu_{\mathbf{k}}}{2c_s}\right)^2} \right). \quad (\text{G.1.5})$$

Finalement, en considérant que le confinement est le même dans les bandes de valence et de conduction,  $d_c = d_v = d$ , et en passant à la limite continue  $\sum_{\mathbf{k}} \rightarrow (L^3/2\pi^2 c_s^3) \int d\nu \nu^2$ , nous pouvons calculer la densité spectrale de couplage,

$$J_{ph}^{(1)}(\nu) = \alpha \nu^3 e^{-\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2}, \quad (\text{G.1.6})$$

avec  $\alpha = \hbar(D_c - D_v)^2/4\pi^2 \rho c_s^5$  où  $\alpha/\hbar^2$  est en  $\text{s}^2$  et  $\nu_c = \sqrt{2}c_s/d$  la fréquence de coupure qui caractérise la gamme de phonons interagissant avec la BQ.

## G.1.2 Fonction de corrélation

Nous calculons ici la fonction de corrélation  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t_1, t_2) = \langle \hat{B}_-(t_1)\hat{B}_+(t_2) \rangle$  du couplage linéaire aux phonons, où  $\hat{B}_{\pm}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}\hat{B}_{\pm}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}t}$  sont les opérateurs de déplacement phononique définis dans la partie 3.3.2, en représentation Heisenberg. Comme dans le cas du couplage quadratique aux phonons et au champ électromagnétique, nous faisons ici l'approximation de Born, qui consiste à supposer que l'influence de la BQ sur le bain de phonons est négligeable (voir partie B.1). Comme dans la partie B.3.3, cette approximation permet de montrer que  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t_1, t_2) = \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t_1 - t_2)$  et entraîne que l'évolution des opérateurs du bain de phonons pour le couplage linéaire est générée par le Hamiltonien libre ( $\hat{H}_{ph}$ ) même en représentation Heisenberg. Il en résulte que nous calculerons dans la suite  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = \langle \hat{B}_-(\tau)\hat{B}_+(0) \rangle$  avec  $\hat{B}_{\pm}(\tau) \approx e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{ph}\tau}\hat{B}_{\pm}e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{ph}\tau}$ .

### G.1.2.1 Utilisation des états cohérents

Pour le calcul de  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$ , il est pratique d'utiliser les états cohérents (ou états de Glaubert) [161]. Nous nous proposons ici de faire le lien entre ces états et la fonction de corrélation à calculer, ainsi que de rappeler deux résultats utiles pour la suite. Nous avons vu dans la partie 3.3.2 qu'en notant  $\alpha_{\mathbf{k}} = \alpha_{\mathbf{k}}^* = g_{\mathbf{k}}/\hbar\nu_{\mathbf{k}}$ ,

$$\begin{aligned}\hat{B}_{\pm} &= e^{\pm \sum_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} - \alpha_{\mathbf{k}}^* \hat{b}_{\mathbf{k}}} \\ &= \prod_{\mathbf{k}} e^{\pm (\alpha_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^{\dagger} - \alpha_{\mathbf{k}}^* \hat{b}_{\mathbf{k}})} \\ &= \prod_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}(\pm \alpha_{\mathbf{k}}),\end{aligned}\tag{G.1.7}$$

où  $D_{\mathbf{k}}(\alpha) = e^{(\alpha \hat{b}^{\dagger} - \alpha^* \hat{b})}$  est l'opérateur création de l'état cohérent  $|\alpha\rangle$  [162]. Les opérateurs  $\hat{B}_{\pm}$  sont donnés en représentation Hiesenberg par

$$\begin{aligned}\hat{B}_{\pm}(\tau) &\approx e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} \hat{B}_{\pm} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} \\ &= e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} \prod_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}(\pm \alpha_{\mathbf{k}}) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} \\ &= \prod_{\mathbf{k}} e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} D_{\mathbf{k}}(\pm \alpha_{\mathbf{k}}) e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} \tau} \\ &= \prod_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}(\pm \alpha_{\mathbf{k}} e^{i\nu_{\mathbf{k}} \tau}).\end{aligned}\tag{G.1.8}$$

Pour finir, nous rappelons deux propriétés de l'opérateur  $D_{\mathbf{k}}(\alpha)$  [124],

$$D_{\mathbf{k}}(\alpha) D_{\mathbf{k}}(\beta) = D_{\mathbf{k}}(\alpha + \beta) e^{i \text{Im}[\alpha \beta^*]},\tag{G.1.9a}$$

$$\langle D_{\mathbf{k}}(\alpha) \rangle = e^{-|\alpha|^2 (n_{\mathbf{k}} + 1/2)},\tag{G.1.9b}$$

où  $n_{\mathbf{k}} = (\exp(\beta \hbar \nu_{\mathbf{k}}) - 1)^{-1}$  est le nombre de phonons dans le mode  $\mathbf{k}$  à la température  $T$ , avec  $\beta = 1/k_B T$ .

### G.1.2.2 Calcul de la fonction de corrélation

En utilisant l'Eq. (G.1.8), la fonction de corrélation devient

$$\begin{aligned}\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) &= \langle \hat{B}_-(\tau) \hat{B}_+ \rangle \\ &= \left\langle \prod_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} D_{\mathbf{k}}(-\alpha_{\mathbf{k}} e^{i\nu_{\mathbf{k}} \tau}) D_{\mathbf{k}'}(+\alpha_{\mathbf{k}'}) \right\rangle.\end{aligned}\tag{G.1.10}$$

En supposant que le bain de phonons est initialement à l'équilibre thermique, c'est-à-dire dans un état stationnaire, nous montrons que  $\hat{\rho}_B(0)|n_{\mathbf{k}}\rangle \propto |n_{\mathbf{k}}\rangle$ . Nous en déduisons que  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  dans le double produit apparaissant Eq. (G.1.10), ce qui signifie que chaque terme est indépendant et donc la valeur moyenne du produit est le produit des valeurs moyennes,

$$\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = \prod_{\mathbf{k}} \langle D_{\mathbf{k}}(-\alpha_{\mathbf{k}} e^{i\nu_{\mathbf{k}} \tau}) D_{\mathbf{k}}(+\alpha_{\mathbf{k}}) \rangle.\tag{G.1.11}$$

En utilisant les propriétés (G.1.9a) et (G.1.9b) des états cohérents, nous obtenons

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) &= \prod_{\mathbf{k}} e^{-i|\alpha_{\mathbf{k}}|^2 \sin(\nu_{\mathbf{k}}\tau)} D(\alpha_{\mathbf{k}}(1 - e^{-i\nu_{\mathbf{k}}\tau})) \\ &= \prod_{\mathbf{k}} e^{-i|\alpha_{\mathbf{k}}|^2 \sin(\nu_{\mathbf{k}}\tau)} e^{-|\alpha_{\mathbf{k}}|^2 |1 - e^{-i\nu_{\mathbf{k}}\tau}|^2 (n_{\mathbf{k}} + 1/2)}. \end{aligned} \quad (\text{G.1.12})$$

En remarquant que  $n_{\mathbf{k}} + 1/2 = \coth(\beta\hbar\nu_{\mathbf{k}}/2)/2$ , nous montrons que  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = e^{\tilde{S}(\tau)}$  avec

$$\tilde{S}(\tau) = \sum_{\mathbf{k}} |\alpha_{\mathbf{k}}|^2 \left( [-1 + \cos(\nu_{\mathbf{k}}\tau)] \coth\left(\frac{\beta\hbar\nu_{\mathbf{k}}}{2}\right) - i \sin(\nu_{\mathbf{k}}\tau) \right). \quad (\text{G.1.13})$$

En utilisant le fait que  $\sum_{\mathbf{k}} |\alpha_{\mathbf{k}}|^2 f_{\mathbf{k}} = \int_0^{+\infty} d\nu (1/(\hbar\nu)^2) f(\nu) \sum_{\mathbf{k}} |g_{\mathbf{k}}|^2 \delta(\nu - \nu_{\mathbf{k}})$  pour  $f$  une fonction quelconque, nous faisons apparaître la densité spectrale de couplage  $J_{ph}^{(1)}(\nu) = \sum_{\mathbf{k}} |g_{\mathbf{k}}|^2 \delta(\nu - \nu_{\mathbf{k}})$ , ce qui permet d'écrire

$$\tilde{S}(\tau) = \int_0^{+\infty} d\nu J_{ph}^{(1)}(\nu) \left( [-1 + \cos(\nu\tau)] \coth\left(\frac{\beta\hbar\nu}{2}\right) - i \sin(\nu\tau) \right). \quad (\text{G.1.14})$$

Finalement, en utilisant l'expression obtenue Eq. (G.1.6) de  $J_{ph}^{(1)}(\nu)$ , nous obtenons l'expression finale de la fonction de corrélation du couplage linéaire aux phonons,

$$\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = B^2 e^{\varphi(\tau)} \quad \text{avec} \quad B = e^{-\varphi(0)/2}, \quad (\text{G.1.15})$$

et

$$\varphi(\tau) = \frac{\alpha}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} d\nu \nu e^{-\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} \left[ \cos(\nu\tau) \coth\left(\frac{\beta\hbar\nu}{2}\right) - i \sin(\nu\tau) \right]. \quad (\text{G.1.16})$$

Nous constatons que le seul temps caractéristique apparaissant dans  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$  est l'inverse de la fréquence de coupure apparaissant dans  $J_{ph}^{(1)}(\nu)$ , ce qui indique que les processus d'interaction avec les phonons se font sur des temps de l'ordre de  $1/\nu_c \sim d/c_s$ , où  $d \sim 3 \text{ nm}$  est de l'ordre de la taille de la BQ dans la direction où elle est la plus petite, et  $c_s = 5110 \text{ m/s}$  la vitesse du son dans GaAs. Nous en déduisons donc que les processus d'interaction avec les phonons se font sur des temps de l'ordre de la picoseconde.

## G.2 Couplage quadratique

### G.2.1 Calcul de la densité spectrale de couplage électron-phonon du 2<sup>ème</sup> ordre

Nous définissons la densité spectrale pour le couplage du deuxième ordre comme

$$J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2) = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}|^2 \delta(\nu_1 - \nu_{\mathbf{k}}) \delta(\nu_2 - \nu_{\mathbf{k}'}). \quad (\text{G.2.1})$$

Commençons par obtenir l'expression du coefficient  $f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}$  avant de calculer  $J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2)$ . Nous avons vu dans la partie 3.3.1.2 que le hamiltonien effectif décrivant l'interaction électron-phonon au deuxième ordre est de la forme

$$\hat{H}_{e-ph}^{(2)} = |X\rangle\langle X| \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{-\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{-\mathbf{k}'}), \quad (\text{G.2.2})$$

avec

$$f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = \sum_{i=x,y,z} \left( \frac{M_{X2i}^{\mathbf{k}} M_{2iX}^{\mathbf{k}'}}{E_X - E_2} - \frac{M_{02i}^{\mathbf{k}} M_{2i0}^{\mathbf{k}'}}{E_0 - E_2} \right), \quad (\text{G.2.3})$$

où nous n'avons conservé que les termes dominants, qui correspondent au cas  $m = 2$ . L'indice  $i$  vient du fait que l'état  $m = 2$  est de symétrie  $p$  et est donc en réalité composé de trois états dégénérés en énergie, dont les fonctions d'onde sont données par [160]

$$\psi_{2,x}(\mathbf{r}) = \frac{\sqrt{2}}{d} \left( \frac{1}{\pi d} \right)^{3/4} x e^{-\frac{r^2}{2d^2}}, \quad (\text{G.2.4a})$$

$$\psi_{2,y}(\mathbf{r}) = \frac{\sqrt{2}}{d} \left( \frac{1}{\pi d} \right)^{3/4} y e^{-\frac{r^2}{2d^2}}, \quad (\text{G.2.4b})$$

$$\psi_{2,z}(\mathbf{r}) = \frac{\sqrt{2}}{d} \left( \frac{1}{\pi d} \right)^{3/4} z e^{-\frac{r^2}{2d^2}}, \quad (\text{G.2.4c})$$

en supposant, pour simplifier, que le confinement est le même pour les bandes de valence et de conduction. Les coefficients  $M_{X2i}^{\mathbf{k}}$  et  $M_{02i}^{\mathbf{k}}$  sont donnés par

$$M_{X2i}^{\mathbf{k}} = D_c \sqrt{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \int d\mathbf{r} \psi_c^*(\mathbf{r}) \psi_{2,i}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (\text{G.2.5a})$$

$$M_{02i}^{\mathbf{k}} = D_v \sqrt{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{2\rho c_s^2 L^3}} \int d\mathbf{r} \psi_v^*(\mathbf{r}) \psi_{2,i}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (\text{G.2.5b})$$

où nous avons supposé que le potentiel de déformation ne dépend pas de  $\mathbf{k}$  et est celui de la bande de valence pour  $M_{02}^{\mathbf{k}}$  et celui de la bande de conduction pour  $M_{X2}^{\mathbf{k}}$ . En fait, l'approximation est ici plus forte puisque contrairement à  $M_{XX}^{\mathbf{k}}$  et  $M_{00}^{\mathbf{k}}$ , les coefficients ont une contribution dans deux états différents,  $|X\rangle$  et  $|2\rangle$  pour  $M_{X2}^{\mathbf{k}}$  par exemple. Nous constatons que pour connaître l'expression de  $f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$  nous devons calculer des intégrales du type

$$I_i = \int d\mathbf{r} \psi^*(\mathbf{r}) \psi_{2,i}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}, \quad (\text{G.2.6})$$

où  $i = x, y, z$  et  $\psi(\mathbf{r}) = \psi_c(\mathbf{r}) = \psi_v(\mathbf{r})$  puisque nous avons supposé  $d_c = d_v = d$ . Ces intégrales (G.2.6) se calculent en utilisant les expressions des fonctions d'onde données précédemment, et nous obtenons

$$M_{X2i}^{\mathbf{k}} = -\frac{id}{2} D_c \sqrt{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{\rho c_s^2 L^3}} k_i e^{-\frac{\mathbf{k}^2 d^2}{2}}, \quad (\text{G.2.7a})$$

$$M_{02i}^{\mathbf{k}} = -\frac{id}{2} D_v \sqrt{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{\rho c_s^2 L^3}} k_i e^{-\frac{\mathbf{k}^2 d^2}{2}}. \quad (\text{G.2.7b})$$

En notant  $\Delta_X = E_2 - E_X$  et  $\Delta_0 = E_2 - E_0$ , nous obtenons finalement l'expression du coefficient de couplage électron-phonon pour le terme quadratique,

$$f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = -\frac{\hbar d^2}{4\rho c_s^4 V} \left( \frac{D_v^2}{\Delta_0} - \frac{D_c^2}{\Delta_X} \right) \sqrt{\nu_{\mathbf{k}} \nu_{\mathbf{k}'}} e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{\nu_{\mathbf{k}}}{\nu_c} \right)^2 - \frac{1}{2} \left( \frac{\nu_{\mathbf{k}'}}{\nu_c} \right)^2} \sum_{m=x,y,z} \nu_{\mathbf{k}}^m \nu_{\mathbf{k}'}^m, \quad (\text{G.2.8})$$

où  $\nu_{\mathbf{k}}^m = c_s k_m$  avec  $m = x, y, z$ . Nous pouvons alors calculer la densité spectrale pour le couplage aux phonons du deuxième ordre définie Eq. (G.2.1), et nous obtenons

$$J_{ph}^{(2)}(\nu_1, \nu_2) = \frac{\alpha^2 \mu}{4\pi \hbar^2 \nu_c^4} \nu_1^3 e^{-\left(\frac{\nu_1}{\nu_c}\right)^2} \nu_2^3 e^{-\left(\frac{\nu_2}{\nu_c}\right)^2} \left( \sum_{m=x,y,z} \nu_1^m \nu_2^m \right)^2, \quad (\text{G.2.9})$$

où  $\alpha$  et  $\nu_c$  ont été défini dans la partie précédente et où le paramètre  $\mu = 4\pi \hbar^2 \left( \frac{D_v^2}{\Delta_0} - \frac{D_c^2}{\Delta_x} \right)^2 / (D_c - D_v)^4$  (en  $\text{s}^2$ ) ne dépend que des caractéristiques du matériau.

## G.2.2 Fonction de corrélation

Nous calculons ici la fonction de corrélation  $\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = \langle \hat{B}^\dagger(t) \hat{B}(0) \rangle$  du couplage quadratique aux phonons. Nous voyons Eq. (I.0.4) que  $\hat{B}^\dagger(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} t} \hat{B} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} t}$  avec  $\hat{H}_{ph} = \sum_{\mathbf{k}} \hbar \nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}$  le hamiltonien libre du bain de phonons et  $\hat{B} = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'})$  l'opérateur agissant sur le bain de phonons dans le terme d'interaction quadratique. La fonction de corrélation s'écrit

$$\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} \sum_{\mathbf{l}, \mathbf{l}'} f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} f_{\mathbf{l}, \mathbf{l}'} \left\langle (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger(t) + \hat{b}_{\mathbf{k}}(t)) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger(t) + \hat{b}_{\mathbf{k}'}(t)) (\hat{b}_{\mathbf{l}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{l}}) (\hat{b}_{\mathbf{l}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{l}'}) \right\rangle \quad (\text{G.2.10})$$

où, en utilisant le théorème de Baker-Campbell-Hausdorff présenté dans l'annexe B.3.2,  $\hat{b}_{\mathbf{k}}(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} t} \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{-\frac{i}{\hbar} \hat{H}_{ph} t} = \hat{b}_{\mathbf{k}} e^{-i\omega_{\mathbf{k}} t}$ . Les termes non nuls dans l'équation précédente sont ceux pour lesquels les opérateurs création et annihilation apparaissent deux fois chacun, et nous devons calculer des terme de la forme  $\langle \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{l}} \hat{b}_{\mathbf{l}'} \rangle$  par exemple, qui a deux contributions :  $(\delta_{\mathbf{k}, \mathbf{l}} \delta_{\mathbf{k}', \mathbf{l}'} + \delta_{\mathbf{k}, \mathbf{l}'} \delta_{\mathbf{k}', \mathbf{l}}) \langle \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \rangle \langle \hat{b}_{\mathbf{l}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{l}'} \rangle$ . Nous introduisons la distribution de Bose-Einstein, qui donne le nombre de phonons dans le mode  $\mathbf{k}$  à la température  $T$ ,

$$n_{\mathbf{k}} = \langle \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \rangle = \frac{1}{e^{\frac{\hbar \nu_{\mathbf{k}}}{k_B T}} - 1}, \quad (\text{G.2.11})$$

les relations de commutation bosoniques entraînant

$$\langle \hat{b}_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \rangle = n_{\mathbf{k}} + 1. \quad (\text{G.2.12})$$

En considérant que la contribution principale au processus de déphasage est due aux phonons diffusés dans un mode différent de leur mode initial, c'est-à-dire  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}' \neq \mathbf{k}$  et  $\mathbf{l} \rightarrow \mathbf{l}' \neq \mathbf{l}$ , la fonction de corrélation s'écrit

$$\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = 2 \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}|^2 \left( n_{\mathbf{k}} e^{i\nu_{\mathbf{k}} t} + (n_{\mathbf{k}} + 1) e^{-i\nu_{\mathbf{k}} t} \right) \left( n_{\mathbf{k}'} e^{i\nu_{\mathbf{k}'} t} + (n_{\mathbf{k}'} + 1) e^{-i\nu_{\mathbf{k}'} t} \right). \quad (\text{G.2.13})$$

En utilisant le fait que pour deux fonctions  $g$  et  $h$ ,

$$\begin{aligned} \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}|^2 g(\nu_{\mathbf{k}}) h(\nu_{\mathbf{k}'}) &= \int_0^{+\infty} d\nu d\nu' \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'} |f_{\mathbf{k}, \mathbf{k}'}|^2 \delta(\nu - \nu_{\mathbf{k}}) \delta(\nu' - \nu_{\mathbf{k}'}) g(\nu) h(\nu') \\ &= \int_0^{+\infty} d\nu d\nu' J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu') g(\nu) h(\nu'), \end{aligned} \quad (\text{G.2.14})$$

nous obtenons finalement,

$$\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = 2 \int \int_0^{+\infty} d\nu d\nu' J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu') \left( n(\nu) e^{i\nu t} + (n(\nu) + 1) e^{-i\nu t} \right) \left( n(\nu') e^{i\nu' t} + (n(\nu') + 1) e^{-i\nu' t} \right) \quad (\text{G.2.15})$$

Nous remarquons que le seul temps caractéristique  $\tau_B$  intervenant dans  $\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t)$  est l'inverse de la fréquence de coupure apparaissant dans  $J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu')$ , ce qui donne  $\tau_B \sim 1/\nu_c \sim d/c_s$  où  $d \sim 3$  nm et  $c_s = 5110$  m/s. Nous en déduisons que  $\tau_B$  est de l'ordre de la picoseconde, ce qui justifie l'approximation séculaire de la partie 3.3.3.1, ainsi que le fait que les processus d'interaction avec les phonons se font sur des temps de l'ordre de la picoseconde.

### G.2.3 Calcul du coefficient de déphasage pur

Nous voyons dans l'annexe I que le coefficient de déphasage pure est relié à la fonction de corrélation par

$$\gamma_{pd} = \frac{1}{2\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t). \quad (\text{G.2.16})$$

En utilisant l'expression de  $\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t)$  obtenue Eq. (G.2.15), le résultat  $\int_{-\infty}^{+\infty} dt e^{i(\nu-\nu')t} = 2\pi \delta(\nu - \nu')$ , et le fait que  $\nu$  et  $\nu'$  sont positives, nous obtenons

$$\begin{aligned} \gamma_{pd} &= \frac{2\pi}{\hbar^2} \int \int_0^{+\infty} d\nu d\nu' J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu') [n(\nu)(n(\nu') + 1) + (n(\nu) + 1)n(\nu')] \delta(\nu - \nu') \\ &= \frac{4\pi}{\hbar^2} \int_0^{+\infty} d\nu J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu) n(\nu)(n(\nu) + 1). \end{aligned} \quad (\text{G.2.17})$$

Nous avons vu Eq. (G.2.9) que  $J_{ph}^{(2)}(\nu, \nu) = \frac{\alpha^2 \mu}{4\pi \hbar^2 \nu_c^4} \nu^{10} e^{-2\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2}$ , ce qui nous donne finalement

$$\gamma_{pd} = \frac{\alpha^2 \mu}{\hbar^4 \nu_c^4} \int_0^{+\infty} d\nu \nu^{10} e^{-2\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} n(\nu)(n(\nu) + 1). \quad (\text{G.2.18})$$



## Annexe H

# Transformation polaron

Dans cette annexe, nous donnons le détail des calculs permettant de réaliser la transformation dite *polaron* sur le hamiltonien total du système considéré, qui prend en compte l'interaction avec champ électromagnétique, ainsi que le couplage linéaire et quadratique aux phonons. La transformation polaron est une transformation unitaire donnée par

$$\hat{O}_P = e^{\hat{S}} \hat{O} e^{-\hat{S}} \quad \text{avec} \quad \hat{S} = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \alpha_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \hat{b}_{\mathbf{k}}). \quad (\text{H.0.1})$$

Pour rappel, le hamiltonien du système considéré dans la partie 3.3 est donné par

$$\begin{aligned} \hat{H} = & -\frac{\hbar\tilde{\omega}_X}{2} \hat{\sigma}_z + \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda} + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} + \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}) \\ & + \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} g_{\mathbf{k}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) + \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'}). \end{aligned} \quad (\text{H.0.2})$$

Pour commencer, remarquons que puisque  $\hat{\sigma}_z$  et  $\hat{a}_n$  commutent avec  $\hat{S}$ , ces opérateurs sont inchangés sous la transformation polaron. Poursuivons en calculant l'expression de  $\hat{\sigma}_P$ , l'opérateur destruction d'une paire électron-trou dans la boîte sous la transformation polaron,

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_P &= e^{\hat{S}} \hat{\sigma} e^{-\hat{S}} \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} \frac{C_n(\hat{S}, \hat{\sigma})}{n!}, \end{aligned} \quad (\text{H.0.3})$$

où  $C_n(\hat{S}, \hat{\sigma}) = [\hat{S}, \dots [\hat{S}, \hat{\sigma}] \dots]$  a  $n$  commutateurs et où  $C_0(\hat{S}, \hat{\sigma}) = \hat{\sigma}$ . En utilisant le fait que  $[\hat{S}, \hat{\sigma}] = -\hat{C}\hat{\sigma}$ , nous montrons que

$$C_{2n}(\hat{S}, \hat{\sigma}) = \hat{C}^{2n} \hat{\sigma} \quad (n > 0), \quad (\text{H.0.4a})$$

$$C_{2n+1}(\hat{S}, \hat{\sigma}) = -\hat{C}^{2n+1} \hat{\sigma} \quad (n \geq 0), \quad (\text{H.0.4b})$$

ce qui nous permet d'obtenir l'expression voulue,

$$\begin{aligned} \hat{\sigma}_P &= \hat{\sigma} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \frac{\hat{C}^n}{n!} \\ &= \hat{\sigma} \hat{B}_-, \end{aligned} \quad (\text{H.0.5})$$

où nous avons défini l'opérateur de déplacement phononique  $\hat{B}_- = e^{-\hat{C}}$ .

De même, en commençant par montrer que  $[\hat{S}, \hat{b}_{\mathbf{k}}] = -\alpha_{\mathbf{k}}\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}$ , nous obtenons que  $\forall n \geq 2, C_n(\hat{S}, \hat{b}_{\mathbf{k}}) = 0$  et nous en déduisons que

$$\hat{b}_{\mathbf{k}}^P = \hat{b}_{\mathbf{k}} - \alpha_{\mathbf{k}}\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}, \quad (\text{H.0.6})$$

qui est l'expression de l'opérateur destruction d'un phonon dans le mode  $\mathbf{k}$  sous la transformation polaron.

En choisissant  $\alpha_{\mathbf{k}} = g_{\mathbf{k}}/\hbar\nu_{\mathbf{k}}$  et en remarquant que  $f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = f_{\mathbf{k}',\mathbf{k}}$ , le hamiltonien s'exprime sous la transformation polaron

$$\begin{aligned} \hat{H}_P = & -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z + \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda} + \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}_P^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}_P) \\ & + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} - \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \frac{g_{\mathbf{k}}^2}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}} + \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'}) \\ & - 4\hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \left( \sum_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \frac{g_{\mathbf{k}'}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}'}} \right) (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) \\ & + 4\hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \left( \sum_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \frac{g_{\mathbf{k}'}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}'}} \right) \frac{g_{\mathbf{k}}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}}, \end{aligned} \quad (\text{H.0.7})$$

où nous avons utilisé le fait que  $\hat{\sigma}_P^\dagger \hat{\sigma}_P = \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma}$ , qui signifie que la population de l'état excité est inchangée sous la transformation polaron. Nous commençons par montrer que, pour des raisons de symétrie, les deux derniers termes de  $\hat{H}_P$  sont nuls. En utilisant les équations (3.3.8, G.2.8), nous pouvons écrire, dans le cas où le confinement des porteurs est supposé identique quelque soit le niveau électronique,

$$g_{\mathbf{k}'} = A\sqrt{\nu_{\mathbf{k}'}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\nu_{\mathbf{k}'}}{\nu_c}\right)^2}, \quad (\text{H.0.8a})$$

$$f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} = B\sqrt{\nu_{\mathbf{k}'}} e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{\nu_{\mathbf{k}'}}{\nu_c}\right)^2} \sum_{m=x,y,z} \nu_{\mathbf{k}}^m \nu_{\mathbf{k}'}^m, \quad (\text{H.0.8b})$$

où  $A$  et  $B$  sont des constantes indépendantes de  $\mathbf{k}'$ . En écrivant

$$\nu_{\mathbf{k}'}^x = k'c \sin \theta_{\mathbf{k}'} \sin \varphi_{\mathbf{k}'}, \quad (\text{H.0.9a})$$

$$\nu_{\mathbf{k}'}^y = k'c \sin \theta_{\mathbf{k}'} \cos \varphi_{\mathbf{k}'}, \quad (\text{H.0.9b})$$

$$\nu_{\mathbf{k}'}^z = k'c \cos \theta_{\mathbf{k}'}, \quad (\text{H.0.9c})$$

avec  $(k', \theta_{\mathbf{k}'}, \varphi_{\mathbf{k}'})$  les composantes de  $\mathbf{k}'$  en coordonnées sphériques, et en passant à la limite continue  $\sum_{\mathbf{k}} \rightarrow (L^3/2\pi^2) \int dk k^2$ , nous obtenons

$$\begin{aligned} \sum_{\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} \frac{g_{\mathbf{k}'}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}'}} &= \frac{ABC V}{8\pi^3 \hbar} \int_0^{+\infty} dk' \int_0^\pi d\theta \int_0^{2\pi} d\varphi k'^3 \sin \theta [\nu_{\mathbf{k}}^x \sin \theta \cos \varphi + \nu_{\mathbf{k}}^y \sin \theta \sin \varphi + \nu_{\mathbf{k}}^z \cos \theta] \\ &= 0, \end{aligned} \quad (\text{H.0.10})$$

à cause des intégrales sur  $\varphi$  et  $\theta$ . Ceci justifie que les deux derniers termes de (H.0.7) sont nuls. De plus, en remarquant que  $\hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} = \frac{1}{2}(\mathbb{1} - \hat{\sigma}_z)$  et en notant l'énergie  $\sum_{\mathbf{k}} \frac{g_{\mathbf{k}}^2}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}} = \hbar\omega_\alpha$ , nous avons

$$-\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z - \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k}} \frac{g_{\mathbf{k}}^2}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}} = -\frac{\hbar\omega_\alpha}{2}\mathbb{1} - \frac{\hbar(\omega_X - \omega_\alpha)}{2}\hat{\sigma}_z. \quad (\text{H.0.11})$$

En redéfinissant l'origine des énergies en  $-\hbar\omega_\alpha/2$  et en renormalisant l'énergie de la BQ en notant  $\tilde{\omega}_X = \omega_X - \omega_\alpha$ , le hamiltonien du système sous la transformation polaron s'écrit finalement

$$\begin{aligned} \hat{H}_P = & -\frac{\hbar\tilde{\omega}_X}{2}\hat{\sigma}_z + \sum_{n,\lambda} \hbar\omega_n \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{a}_{n,\lambda} + \sum_{\mathbf{k}} \hbar\nu_{\mathbf{k}} \hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger \hat{b}_{\mathbf{k}} \\ & + \sum_{n,\lambda} (f_{n,\lambda} \hat{a}_{n,\lambda} \hat{\sigma}_P^\dagger + f_{n,\lambda}^* \hat{a}_{n,\lambda}^\dagger \hat{\sigma}_P) + \hat{\sigma}^\dagger \hat{\sigma} \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'}). \end{aligned} \quad (\text{H.0.12})$$

Nous constatons que la transformation polaron nous a bien permis de s'affranchir du terme de couplage linéaire aux phonons. En contrepartie, les opérateurs création et destruction d'une paire électron-trou dans la BQ sont "habillés" par les phonons,

$$\hat{\sigma}_P = \hat{\sigma} \hat{B}_-, \quad (\text{H.0.13a})$$

$$\hat{\sigma}_P^\dagger = \hat{\sigma}^\dagger \hat{B}_+, \quad (\text{H.0.13b})$$

avec  $\hat{B}_\pm = e^{\pm\hat{C}}$  l'opérateur de déplacement phononique où  $\hat{C} = \sum_{\mathbf{k}} \frac{g_{\mathbf{k}}}{\hbar\nu_{\mathbf{k}}} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger - \hat{b}_{\mathbf{k}})$ . Notons tout de même que la fréquence propre de la BQ a été renormalisée, ce qui est sans importance et, afin de simplifier les notations dans le texte principal, nous ne noterons plus le tilde sur  $\omega_X$ .



## Annexe I

# Formalisme de Lindblad pour le couplage quadratique aux phonons

Nous avons vu dans la partie 3.3.3.1 que l'équation maîtresse en représentation interaction et sous la transformation polaron est de la forme

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = \Gamma \mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s], \quad (\text{I.0.1})$$

où  $\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] = \hat{O}\hat{\rho}_s\hat{O}^\dagger - \frac{1}{2}\{\hat{O}^\dagger\hat{O}, \hat{\rho}_s\}$  et où  $\Gamma$  est le taux de recombinaison radiatif. En notant  $\hat{H}_{e-ph,P}^{(2)}$  le hamiltonien d'interaction électron-phonon quadratique sous la transformation polaron, nous pouvons écrire  $\hat{H}_{e-ph,P}^{(2)} = \hat{A}\hat{B}$  avec cette fois  $\hat{A} = \hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}$  et  $\hat{B} = \sum_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} f_{\mathbf{k},\mathbf{k}'} (\hat{b}_{\mathbf{k}}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}}) (\hat{b}_{\mathbf{k}'}^\dagger + \hat{b}_{\mathbf{k}'})$ . L'opérateur  $D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s]$  est alors de la forme

$$D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s] = \sum_{\omega} \gamma(\omega) \left[ \hat{A}(\omega)\hat{\rho}_s\hat{A}^\dagger(\omega) - \frac{1}{2}\{\hat{A}^\dagger(\omega)\hat{A}(\omega), \hat{\rho}_s(t)\} \right], \quad (\text{I.0.2})$$

où comme dans la partie 1.3.3.3,

$$\hat{A}(\omega) = \sum_{\hbar\omega=\epsilon'-\epsilon} \hat{\Pi}(\epsilon)\hat{A}\hat{\Pi}(\epsilon'), \quad (\text{I.0.3})$$

avec  $\hat{\Pi}(\epsilon)$  le projecteur sur le sous-espace propre associé à la valeur propre  $\epsilon$  de  $\hat{H}_{\text{QD}}$ . Le coefficient  $\gamma(\omega)$  est donné par

$$\gamma(\omega) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} ds e^{i\omega s} \langle \hat{B}^\dagger(s)\hat{B}(0) \rangle \quad \text{avec} \quad \hat{B}(t) = e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{\text{ph}}t} \hat{B} e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{\text{ph}}t}. \quad (\text{I.0.4})$$

Nous constatons que  $\gamma(\omega)$  est proportionnel à la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du réservoir pour le couplage quadratique  $\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = \langle \hat{B}^\dagger(t)\hat{B}(0) \rangle$ . Ici, les opérateurs  $\hat{A}(\omega)$  s'écrivent

$$\hat{A}(\omega_X) = \hat{\Pi}_0\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}\hat{\Pi}_X = 0, \quad (\text{I.0.5a})$$

$$\hat{A}(-\omega_X) = \hat{\Pi}_X\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}\hat{\Pi}_0 = 0, \quad (\text{I.0.5b})$$

$$\hat{A}(0) = \hat{\Pi}_X\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}\hat{\Pi}_X + \hat{\Pi}_0\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}\hat{\Pi}_0 = \hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}. \quad (\text{I.0.5c})$$

La condition initiale de l'équation maîtresse (B.3.10) est bien vérifiée puisqu'en supposant que la boîte est initialement dans son état excité, nous avons pour tout  $\omega$ ,  $[\hat{A}(\omega), \hat{\rho}(0)] = 0$ . De plus,

$$D_{ph}^{(2)}[\hat{\rho}_s] = \gamma(0)\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] \quad \text{avec} \quad \gamma(0) = \frac{1}{\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} ds \langle \hat{B}^\dagger(s)\hat{B}(0) \rangle. \quad (\text{I.0.6})$$

Nous noterons  $\gamma(0) = 2\gamma_{\text{pd}}$  pour *pure dephasing*, puisque nous constatons dans le texte principal que ce coefficient entraîne un élargissement homogène de la raie de luminescence, contrairement au couplage linéaire aux phonons qui change la forme de la raie de luminescence avec l'apparition des PSB. Le calcul de la fonction de corrélation du couplage quadratique aux phonons  $\mathcal{C}_{ph}^{(2)}(t) = \langle \hat{B}^\dagger(t)\hat{B}(0) \rangle$  ainsi que celui de  $\gamma_{\text{pd}}$  est réalisé dans l'annexe G.2, et l'équation maîtresse en représentation interaction se met finalement sous la forme

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = \Gamma\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + 2\gamma_{\text{pd}}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s], \quad (\text{I.0.7})$$

avec  $\gamma_{\text{pd}}$  donné par

$$\gamma_{\text{pd}} = \frac{\alpha^2\mu}{\hbar^4\nu_c^4} \int_0^{+\infty} d\nu \nu^{10} e^{-2\left(\frac{\nu}{\nu_c}\right)^2} n(\nu)(n(\nu) + 1), \quad (\text{I.0.8})$$

où  $n(\nu)$  est la distribution de Bose-Einstein. Enfin, en remarquant que  $e^{-\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{\text{QD}}t}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s]e^{\frac{i}{\hbar}\hat{H}_{\text{QD}}t} = \mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s]$ , il est possible d'exprimer l'équation maîtresse en représentation Schrödinger comme nous l'avons fait dans la partie 1.3.3.3,

$$\frac{d\hat{\rho}_s}{dt} = -\frac{i}{\hbar}[\hat{H}_{\text{QD}}, \hat{\rho}] + \Gamma\mathcal{L}_{\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s] + 2\gamma_{\text{pd}}\mathcal{L}_{\hat{\sigma}^\dagger\hat{\sigma}}[\hat{\rho}_s]. \quad (\text{I.0.9})$$

avec  $\mathcal{L}_{\hat{O}}[\hat{\rho}_s] = \hat{O}\hat{\rho}_s\hat{O}^\dagger - \frac{1}{2}\{\hat{O}^\dagger\hat{O}, \hat{\rho}_s\}$  et  $\hat{H}_{\text{QD}} = -\frac{\hbar\omega_X}{2}\hat{\sigma}_z$ .

## Annexe J

# Prise en compte du filtrage spectral de la cavité dans le calcul de l'indiscernabilité

### Sommaire

---

<b>J.1 Indiscernabilité dans le domaine fréquentiel</b> . . . . .	<b>201</b>
<b>J.2 Prise en compte du filtrage spectral de la cavité</b> . . . . .	<b>202</b>
<b>J.3 Séparation des contributions de la ZPL et des PSB</b> . . . . .	<b>203</b>
<b>J.4 Retour au calcul de l'indiscernabilité</b> . . . . .	<b>205</b>
<b>J.5 Coefficient de filtrage de la cavité</b> . . . . .	<b>205</b>

---

Dans cette annexe, nous présentons le calcul de l'indiscernabilité des photons émis par une BQ en prenant en compte le couplage linéaire et quadratique au bain de phonons, ainsi que le filtrage spectral d'une partie des PSB, dû à la cavité à miroirs de Bragg dans laquelle sont insérées les BQ.

### J.1 Indiscernabilité dans le domaine fréquentiel

Nous avons vu Eq. (3.2.19) que l'indiscernabilité des photons émis par une BQ est de la forme,

$$\mathcal{I} = \frac{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau |\langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle|^2}{\int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau \langle \hat{E}^{(-)}(t) \hat{E}^{(+)}(t) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t+\tau) \hat{E}^{(+)}(t+\tau) \rangle}. \quad (\text{J.1.1})$$

Afin de prendre en compte le filtrage spectral de la cavité à miroirs de Bragg, nous exprimons  $\mathcal{I}$  dans le domaine fréquentiel [163] en définissant le *spectre à deux couleurs*,

$$S(\omega, \nu) = \langle \hat{E}^{(-)}(\omega) \hat{E}^{(+)}(\nu) \rangle \quad \text{avec} \quad \hat{E}^{(\pm)}(\omega) = \int_0^{+\infty} dt e^{\pm i\omega t} \hat{E}^{(\pm)}(t). \quad (\text{J.1.2})$$

Nous définissons de plus

$$\tilde{\mathcal{I}} = P^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |S(\omega, \nu)|^2, \quad (\text{J.1.3})$$

où  $P = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega S(\omega, \omega)$ , et nous allons montrer que  $\tilde{\mathcal{I}} = \mathcal{I}$ . En utilisant le fait que  $\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{i\omega(t-t')} = 2\pi \delta(t-t')$ ,  $\tilde{\mathcal{I}}$  se met sous la forme

$$\tilde{\mathcal{I}} = \frac{\int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 |\langle \hat{E}^{(-)}(t_1) \hat{E}^{(+)}(t_2) \rangle|^2}{\int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 \langle \hat{E}^{(-)}(t_1) \hat{E}^{(+)}(t_1) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t_2) \hat{E}^{(+)}(t_2) \rangle}. \quad (\text{J.1.4})$$

Nous observons que la seule différence entre l'expression de  $\tilde{\mathcal{I}}$  obtenue ci-dessus et celle de  $\mathcal{I}$  Eq.(3.3.41), vient du fait que les variables d'intégration sont différentes. Afin de montrer l'égalité voulue, il est utile de noter

$$f_N(t_1, t_2) = |\langle \hat{E}^{(-)}(t_1) \hat{E}^{(+)}(t_2) \rangle|^2, \quad (\text{J.1.5a})$$

$$f_D(t_1, t_2) = \langle \hat{E}^{(-)}(t_1) \hat{E}^{(+)}(t_1) \rangle \langle \hat{E}^{(-)}(t_2) \hat{E}^{(+)}(t_2) \rangle, \quad (\text{J.1.5b})$$

et de remarquer que  $f_{N/D}(t_1, t_2) = f_{N/D}(t_2, t_1)$ . Nous avons alors  $\tilde{\mathcal{I}} = \tilde{\mathcal{I}}_N / \tilde{\mathcal{I}}_D$  avec  $\tilde{\mathcal{I}}_{N/D} = \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 f_{N/D}(t_1, t_2)$  où l'intégrale est prise sur le quart de plan ( $t_1 > 0, t_2 > 0$ ), schématisé par la zone grisée Figure J.1 (a).

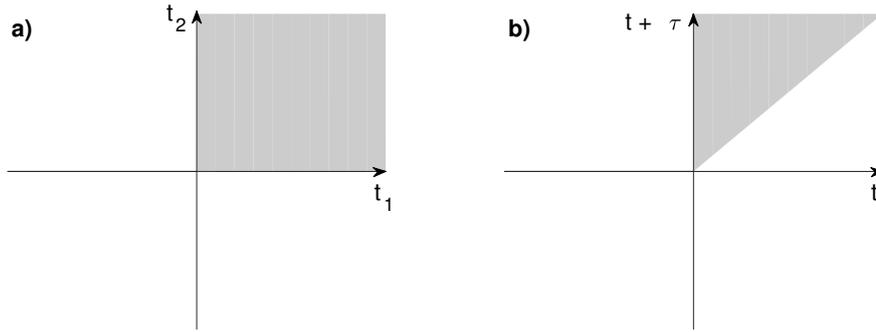


FIGURE J.1 – Zones d'intégration apparaissant dans le calcul de l'indiscernabilité sous la forme  $\tilde{\mathcal{I}}$  Eq. (J.1.4) (a) et sous la forme  $\mathcal{I}$  Eq. (J.1.1) (b).

Dans le cas de  $\mathcal{I}$ , nous avons  $\mathcal{I} = \mathcal{I}_N / \mathcal{I}_D$  avec  $\mathcal{I}_{N/D} = \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau f_{N/D}(t, t + \tau)$ . La différence avec ce qui précède vient du fait qu'ici  $t$  et  $\tau$  n'apparaissent pas indépendamment mais sous la forme  $t$  et  $t + \tau$ , ce qui revient à prendre l'intégrale sur le demi-quart de plan schématisé Figure J.1 (b) et défini par ( $t_1 > 0, t_2 > t_1$ ). Comme  $f_{N/D}(t_1, t_2) = f_{N/D}(t_2, t_1)$ , nous en déduisons que  $\tilde{\mathcal{I}}_{N/D} = 2\mathcal{I}_{N/D}$  ce qui justifie que  $\tilde{\mathcal{I}} = \mathcal{I}$  et donc que

$$\mathcal{I} = P^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |S(\omega, \nu)|^2. \quad (\text{J.1.6})$$

## J.2 Prise en compte du filtrage spectral de la cavité

Afin de prendre en compte le filtrage dû à la cavité, il est nécessaire de remplacer le champ  $\hat{E}^{(+)}(\omega)$  dans l'expression de  $S(\omega, \nu)$  par  $h(\omega) \hat{E}^{(+)}(\omega)$  où  $h(\omega)$  est la réponse spectrale de la cavité qui s'écrit

$$h(\omega) = \frac{\kappa/2}{\kappa/2 + i(\omega - \omega_{cav})}, \quad (\text{J.2.1})$$

avec  $\kappa$  la largeur à mi-hauteur de la cavité et  $\omega_{cav}$  la fréquence centrale de la fonction de réponse de la cavité. Le spectre à deux couleurs réellement mesuré par nos appareils de mesure et intervenant dans l'équation. (J.1.6) s'écrit alors

$$\begin{aligned} S(\omega, \nu) &= h^*(\omega)h(\nu) \left\langle \hat{E}^{(-)}(\omega)\hat{E}^{(+)}(\nu) \right\rangle \\ &= h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 \left\langle \hat{E}^{(-)}(t_1)\hat{E}^{(+)}(t_2) \right\rangle e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2}. \end{aligned} \quad (\text{J.2.2})$$

Nous donnons Figure 3.17 dans le texte principal et en échelle log, l'allure du spectre émis par la BQ donné par les équations (3.3.37) et (3.3.40), ainsi que la réponse spectrale de la cavité. Nous constatons qu'une partie des PSB est bien filtrée par la cavité et qu'il est nécessaire de prendre en compte cet effet dans le calcul de l'indiscernabilité.

### J.3 Séparation des contributions de la raie zéro phonon et des ailes phonon

Nous utilisons ici, comme dans la partie 3.3.4.1, le fait que les temps caractéristiques associés à la relaxation des phonons d'une part, et à l'émission d'un photon d'autre part sont très différents. La fonction de corrélation du champ électrique peut alors se factoriser sous la forme (3.3.30) rappelée ci-dessous, en une partie ZPL et une partie PSB,

$$\left\langle \hat{E}^{(-)}(t + \tau)\hat{E}^{(+)}(t) \right\rangle = |K|^2 g_P^{(1)}(t + \tau, t) \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau), \quad (\text{J.3.1})$$

où nous avons utilisé le fait que  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(t + \tau, t) = \mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau)$ . En écrivant  $\mathcal{C}_{ph}^{(1)}(\tau) = B^2 e^{\varphi(\tau)}$  où  $\varphi(\tau)$  est donné Eq. (3.3.33), le spectre à deux couleurs défini Eq. (J.1.2) s'écrit

$$S(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 g_P^{(1)}(t_1, t_2) e^{\varphi(t_1 - t_2)} e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2}. \quad (\text{J.3.2})$$

En écrivant, comme dans la partie 3.3.4.2,  $e^{\varphi(t_1 - t_2)} = 1 + e^{\varphi(t_1 - t_2)} - 1$ , nous obtenons  $S(\omega, \nu) = S_{ZPL}(\omega, \nu) + S_{PSB}(\omega, \nu)$  avec

$$S_{ZPL}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 g_P^{(1)}(t_1, t_2) e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2}, \quad (\text{J.3.3a})$$

$$S_{PSB}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 g_P^{(1)}(t_1, t_2) \left( e^{\varphi(t_1 - t_2)} - 1 \right) e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2}. \quad (\text{J.3.3b})$$

Nous constatons donc qu'il est possible de séparer la contribution de la ZPL et celle des PSB. Nous allons à présent écrire  $S_{ZPL}(\omega, \nu)$  et  $S_{PSB}(\omega, \nu)$  sous une forme plus pratique pour la suite, en faisant le changement de variable  $(t_1, t_2) \rightarrow (t + \tau, t)$ . Pour cela, nous définissons [163],

$$\mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\nu - \omega)t} e^{-i\omega\tau} g_P^{(1)}(t + \tau, t), \quad (\text{J.3.4a})$$

$$\mathcal{S}_{PSB}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega)h(\nu) \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\nu - \omega)t} e^{-i\omega\tau} g_P^{(1)}(t + \tau, t) \left( e^{\varphi(\tau)} - 1 \right). \quad (\text{J.3.4b})$$

Nous allons montrer que  $S_{ZPL}(\omega, \nu) = \mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{ZPL}^*(\nu, \omega)$  et nous en déduisons la relation similaire pour  $S_{PSB}(\omega, \nu)$ . En réalisant le changement de variable  $t_1 = t + \tau$  et  $t_2 = t$  (qui a un jacobien de 1), nous obtenons

$$\mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega) h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_2 \int_{t_2}^{+\infty} dt_1 e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2} g_P^{(1)}(t_1, t_2), \quad (\text{J.3.5})$$

où l'intégrale est prise sur le demi quart de plan comme schématisé Figure J.2 (a). En faisant le changement de variable  $t_1 \leftrightarrow t_2$  et en utilisant le fait que  $g_P^{(1)*}(t_1, t_2) = g_P^{(1)}(t_2, t_1)$ , nous montrons que

$$\mathcal{S}_{ZPL}^*(\nu, \omega) = |K|^2 B^2 h^*(\omega) h(\nu) \int_0^{+\infty} dt_1 \int_{t_1}^{+\infty} dt_2 e^{-i\omega t_1} e^{i\nu t_2} g_P^{(1)}(t_1, t_2), \quad (\text{J.3.6})$$

où l'intégrale est prise sur le demi quart de plan comme schématisé Figure J.2 (b). Nous constatons donc que dans  $\mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{ZPL}^*(\nu, \omega)$ , l'intégrale est prise sur le quart de plan tout entier correspondant à  $t_1 > 0$  et  $t_2 > 0$ , ce qui est aussi le cas dans l'expression de  $S_{ZPL}(\omega, \nu)$  Eq. (J.3.3a). Nous en déduisons finalement que

$$S_{ZPL}(\omega, \nu) = \mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{ZPL}^*(\nu, \omega). \quad (\text{J.3.7})$$

Par un raisonnement similaire et en utilisant le fait que  $(e^{i\varphi(t_1-t_2)} - 1)^* = (e^{i\varphi(t_2-t_1)} - 1)$ , nous montrons que

$$S_{PSB}(\omega, \nu) = \mathcal{S}_{PSB}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{PSB}^*(\nu, \omega). \quad (\text{J.3.8})$$

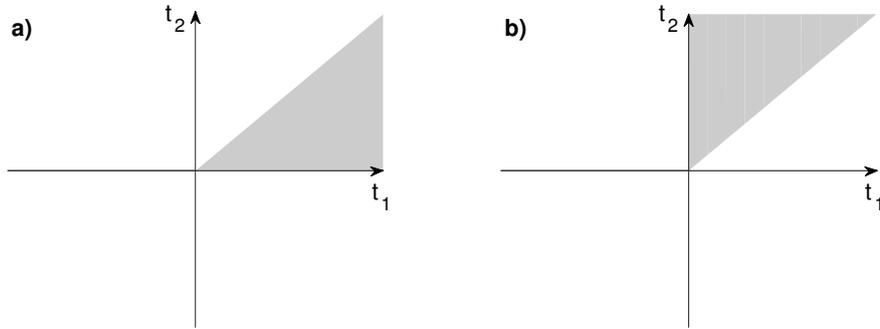


FIGURE J.2 – Zones d'intégrations apparaissant dans l'expression de  $\mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu)$  Eq. (J.3.5) (a) et dans celle de  $\mathcal{S}_{ZPL}^*(\omega, \nu)$  Eq. (J.3.6) (b).

Ainsi, nous avons bien montré que  $S(\omega, \nu) = S_{ZPL}(\omega, \nu) + S_{PSB}(\omega, \nu)$ , ces spectres à deux couleurs étant donnés par

$$S_{ZPL}(\omega, \nu) = \mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{ZPL}^*(\omega, \nu), \quad (\text{J.3.9a})$$

$$S_{PSB}(\omega, \nu) = \mathcal{S}_{PSB}(\omega, \nu) + \mathcal{S}_{PSB}^*(\omega, \nu), \quad (\text{J.3.9b})$$

où

$$\mathcal{S}_{ZPL}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega) h(\nu) \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\nu-\omega)t} e^{-i\omega\tau} g_P^{(1)}(t+\tau, t), \quad (\text{J.3.10a})$$

$$\mathcal{S}_{PSB}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega) h(\nu) \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\nu-\omega)t} e^{-i\omega\tau} g_P^{(1)}(t+\tau, t) (e^{i\varphi(\tau)} - 1). \quad (\text{J.3.10b})$$

Nous observons donc que le spectre à deux couleurs peut se mettre sous la forme de deux contributions, une associée à la ZPL ( $S_{ZPL}$ ), qui prend en compte le couplage au champ électromagnétique ainsi que le couplage quadratique au bain de phonon, une autre associée aux PSB ( $S_{PSB}$ ), prenant en compte le couplage linéaire au bain de phonons. Ceci est similaire à la partie 3.3.4 du texte principal où nous avons montré que le spectre d'émission d'une BQ est aussi la somme de ces deux mêmes contributions.

## J.4 Retour au calcul de l'indiscernabilité

En utilisant l'expression (J.1.6) de l'indiscernabilité et le fait que  $S(\omega, \nu) = S_{ZPL}(\omega, \nu) + S_{PSB}(\omega, \nu)$ , nous avons

$$\mathcal{I} = P^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |S_{ZPL}(\omega, \nu) + S_{PSB}(\omega, \nu)|^2, \quad (\text{J.4.1})$$

avec  $P = P_{ZPL} + P_{PSB}$  où  $P_{ZPL/PSB} = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega S_{ZPL/PSB}(\omega, \omega)$ . La contribution des PSB se faisant à des énergies différentes de celle de la ZPL, elles ne contribuent pas à l'indiscernabilité de telle sorte que

$$\mathcal{I} \approx P^{-2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \int_{-\infty}^{+\infty} d\nu |S_{ZPL}(\omega, \nu)|^2. \quad (\text{J.4.2})$$

En remarquant que la prise en compte de l'interaction quadratique avec les phonons a pour unique conséquence de transformer  $\Gamma/2$  en  $\Gamma/2 + \gamma_{pd}$  lorsque l'on passe du système d'équations (1.3.60) à (3.3.25), nous obtenons l'expression de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  à partir de l'Eq. (1.3.66),

$$g_P^{(1)}(t+\tau, t) = e^{i\omega_X \tau} e^{-\Gamma t} e^{-(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd})\tau}. \quad (\text{J.4.3})$$

Nous obtenons alors, grâce aux équations (J.3.9a) et (J.3.10a), le spectre à deux couleurs pour la partie ZPL

$$S_{ZPL}(\omega, \nu) = |K|^2 B^2 h^*(\omega) h(\nu) \frac{\Gamma + 2\gamma_{pd} + i(\omega - \nu)}{[\Gamma - i(\nu - \omega)] [\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd} - i(\omega_x - \omega)] [\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd} + i(\omega_x - \nu)]} \quad (\text{J.4.4})$$

qui a bien une forme lorentzienne si  $\nu = \omega$  en accord avec Eq. (3.3.37), et nous constatons ici aussi que la prise en compte du couplage quadratique aux phonons a pour conséquence d'élargir la luminescence de la ZPL. En remarquant que la largeur de la ZPL ( $\sim 1 \mu\text{eV}$ ) est très petite devant la largeur à mi-hauteur de la réponse spectrale de la cavité (quelques meV voir Figure 3.17), il est possible de considérer que la fonction de réponse de la cavité est constante à l'échelle de la ZPL. Les équations (J.4.2) et (J.4.4) donnent alors [121, 163]

$$\mathcal{I} = \frac{4\pi^2}{\Gamma(\Gamma + 2\gamma_{pd})} P^{-2} |K|^4 B^4 |h(\omega_X)|^4. \quad (\text{J.4.5})$$

## J.5 Coefficient de filtrage de la cavité

Afin d'obtenir une expression finale de l'indiscernabilité, il nous reste à calculer le facteur  $P$  apparaissant dans l'Eq. (J.4.5), donné par  $P = P_{ZPL} + P_{PSB}$  avec  $P_{ZPL/PSB} = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega S_{ZPL/PSB}(\omega, \omega)$ .

Nous obtenons la partie ZPL à partir de l'Eq. J.4.4, en considérant comme dans la partie précédente, que la ZPL est filtrée de manière homogène par la cavité,

$$P_{ZPL} = \frac{2\pi}{\Gamma} |K|^2 B^2 |h(\omega_X)|^2. \quad (\text{J.5.1})$$

Pour  $P_{PSB}$ , la difficulté vient du fait que cette fois la fonction de réponse spectrale de la cavité varie sur une échelle comparable à celle des PSB, et nous ne pouvons donc plus faire l'approximation précédente. Nous définissons alors  $P_{PSB}^0$ , qui correspond à  $P_{PSB}$  dans le cas où les PSB ne seraient pas filtrées, ainsi que  $F$  le paramètre de filtrage de la cavité de telle sorte que

$$P_{PSB} = F P_{PSB}^0 \quad \text{et} \quad \mathcal{F} = \frac{P_{PSB}}{P_{PSB}^0}. \quad (\text{J.5.2})$$

En remarquant que, comme dans la partie 3.3.4.2, la décroissance de  $g_P^{(1)}(t+\tau, t)$  donnée Eq. (3.3.31) pour la variable  $\tau$  se fait sur un temps  $1/\Gamma$  de l'ordre de la nanoseconde très long devant le temps caractéristique de décroissance de  $e^{\varphi(\tau)} - 1$ , il est possible de prendre cette contribution constante dans l'intégrale, de telle sorte que

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{PSB}(\omega, \omega) &= |K|^2 B^2 |h(\omega)|^2 \int_0^{+\infty} dt \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_X - \omega)\tau} e^{-\Gamma t} (e^{\varphi(\tau)} - 1) \\ &= \frac{|K|^2 B^2}{\Gamma} |h(\omega)|^2 \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_X - \omega)\tau} (e^{\varphi(\tau)} - 1) \\ &\approx \frac{|K|^2 B^2}{\Gamma} |h(\omega)|^2 \int_0^{+\infty} d\tau e^{i(\omega_X - \omega)\tau} \varphi(\tau) \end{aligned} \quad (\text{J.5.3})$$

où, comme dans l'Eq. (3.3.38), la dernière égalité a été obtenue en ne conservant que les termes d'ordre zéro en  $\varphi(\tau)$ , ce qui est valable dans la gamme de température où nous travaillons. Nous en déduisons que la partie PSB du spectre de luminescence est donnée par

$$\begin{aligned} S_{PSB}(\omega, \omega) &= 2\text{Re}[\mathcal{S}_{PSB}(\omega, \omega)] \\ &= \frac{2|K|^2 B^2}{\Gamma} |h(\omega)|^2 \int_0^{+\infty} d\tau \text{Re} \left[ e^{i(\omega_X - \omega)\tau} \varphi(\tau) \right]. \end{aligned} \quad (\text{J.5.4})$$

En utilisant l'expression de  $\varphi(\tau)$  donnée Eq. (3.3.33), en décomposant  $e^{i(\omega_X - \omega)\tau}$  dans le plan complexe, et en utilisant le fait que  $\int_0^{+\infty} d\tau e^{-(\omega - \omega')\tau} = \pi \delta(\omega - \omega')$ , nous obtenons

$$S_{PSB}(\omega, \omega) = \frac{2\pi\alpha}{\hbar^2\Gamma} |K|^2 B^2 |h(\omega)|^2 (\omega - \omega_X) e^{-\left(\frac{\omega - \omega_X}{\nu c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar(\omega - \omega_X)}{2}\right) - 1 \right], \quad (\text{J.5.5})$$

et nous retrouvons une expression du spectre de luminescence pour la partie PSB identique à l'Eq. (3.3.40), mais en prenant en compte cette fois le filtrage de la cavité. Finalement,  $P_{PSB}$  s'obtient en intégrant sur  $\omega$ , ce qui donne

$$P_{PSB} = \frac{2\pi\alpha}{\hbar^2\Gamma} |K|^2 B^2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |h(\omega + \omega_X)|^2 \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) - 1 \right]. \quad (\text{J.5.6})$$

Une expression de  $P_{PSB}^0$  s'obtient en prenant  $|h(\omega + \omega_X)|^2 = 1$  dans l'équation précédente, de telle sorte que

$$\mathcal{F} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |h(\omega + \omega_X)|^2 \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) - 1 \right]}{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) - 1 \right]}. \quad (\text{J.5.7})$$

En remarquant que  $\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu_c}\right)^2} = 0$  puisque la fonction intégrée est impaire, nous obtenons finalement

$$\mathcal{F} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |h(\omega + \omega_X)|^2 \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu_c}\right)^2} \left[ \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right) - 1 \right]}{\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \omega e^{-\left(\frac{\omega}{\nu_c}\right)^2} \coth\left(\frac{\beta\hbar\omega}{2}\right)}. \quad (\text{J.5.8})$$

Pour le calculer  $P_{PSB}^0 = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega S_{PSB}^0(\omega, \omega)$  sous une forme plus compacte, nous utilisons l'expression de  $S_{PSB}(\omega, \omega)$  donnée Eq. (J.3.3b), ainsi que le fait que

$$g_P^{(1)}(t_1, t_2) = e^{i\omega_X(t_1-t_2)} e^{-\Gamma t_2} e^{-\left(\frac{\Gamma}{2} + \gamma_{pd}\right)(t_1-t_2)}. \quad (\text{J.5.9})$$

En négligeant ici aussi la décroissance en  $(t_1 - t_2)$  de  $g_P^{(1)}(t_1, t_2)$  par rapport à celle de  $(e^{\varphi(t_1-t_2)} - 1)$ , nous avons, en prenant  $|h(\omega)| = 1$ ,

$$S_{PSB}^0(\omega, \omega) = |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 e^{i(\omega_X - \omega)(t_1-t_2)} e^{-\Gamma t_2} \left( e^{\varphi(t_1-t_2)} - 1 \right). \quad (\text{J.5.10})$$

En utilisant le fait que  $\int_{-\infty}^{+\infty} d\omega e^{i(\omega_X - \omega)(t_1-t_2)} = 2\pi \delta(t_1 - t_2)$ , nous obtenons

$$\begin{aligned} P_{PSB}^0 &= 2\pi |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} dt_1 \int_0^{+\infty} dt_2 e^{-\Gamma t_2} \left( e^{\varphi(t_1-t_2)} - 1 \right) \delta(t_1 - t_2) \\ &= 2\pi |K|^2 B^2 \int_0^{+\infty} dt e^{-\Gamma t} \left( e^{\varphi(0)} - 1 \right) \\ &= \frac{2\pi}{\Gamma} |K|^2 B^2 \left( e^{\varphi(0)} - 1 \right). \end{aligned} \quad (\text{J.5.11})$$

En se souvenant que  $B = e^{-\varphi(0)/2}$  (voir Eq. (3.3.32)), nous avons finalement

$$P_{PSB}^0 = \frac{2\pi}{\Gamma} |K|^2 (1 - B^2). \quad (\text{J.5.12})$$

Pour conclure, en utilisant l'expression de  $\mathcal{I}$  donnée (J.4.5), celle de  $P_{ZPL}$  Eq. (J.5.1), ainsi que celle de  $P_{PSB}$  Eq. (J.5.2) et de  $P_{PSB}^0$  Eq. (J.5.12), nous obtenons l'expression de l'indiscernabilité des photons émis par une BQ et mesurée dans un dispositif de type HOM, en prenant en compte le filtrage de la cavité dans laquelle est insérée la BQ,

$$\mathcal{I} = \frac{\Gamma}{\Gamma + 2\gamma_{pd}} \left[ \frac{B^2 |h(\omega_X)|^2}{B^2 |h(\omega_X)|^2 + \mathcal{F}(1 - B^2)} \right]^2. \quad (\text{J.5.13})$$

Nous pouvons vérifier que dans le cas où nous ne prenons pas en compte le filtrage spectral de la cavité, c'est-à-dire lorsque  $\mathcal{F} = 1$  et  $h(\omega_X) = 1$ , nous retrouvons l'expression (3.3.48) obtenue dans le texte principal.



# Bibliographie

- [1] R. P. Feynman. Simulating physics with computers. International Journal of Theoretical Physics, 21 :467–488, June 1982. 15
- [2] H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel. Photon Antibunching in Resonance Fluorescence. Physical Review Letters, 39 :691, September 1977. 15
- [3] S. Haroche. Nobel lecture : Controlling photons in a box and exploring the quantum to classical boundary. Reviews of Modern Physics, 85(3) :1083, 2013. 15
- [4] F. Diedrich and H. Walther. Nonclassical radiation of a single stored ion. Physical Review Letters, 58(3) :203, 1987. 15
- [5] J. I. Cirac and P. Zoller. Quantum computations with cold trapped ions. Physical Review Letters, 74(20) :4091, 1995. 15
- [6] D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland. Quantum dynamics of single trapped ions. Reviews of Modern Physics, 75(1) :281, 2003. 15
- [7] L.-M. Duan and C. Monroe. Colloquium : Quantum networks with trapped ions. Reviews of Modern Physics, 82(2) :1209, 2010. 15
- [8] Y. Nakamura, Y. A. Pashkin, and J. S. Tsai. Coherent control of macroscopic quantum states in a single-cooper-pair box. Nature, 398(6730) :786–788, 1999. 15
- [9] J. M. Martinis, S. Nam, J. Aumentado, and C. Urbina. Rabi oscillations in a large josephson-junction qubit. Physical Review Letters, 89(11) :117901, 2002. 15
- [10] M. H. Devoret and R. J. Schoelkopf. Superconducting circuits for quantum information : an outlook. Science, 339(6124) :1169–1174, 2013. 15
- [11] J. L. O’Brien, A. Furusawa, and J. Vučković. Photonic quantum technologies. Nature Photonics, 3(12) :687–695, 2009. 15
- [12] T. E. Northup and R. Blatt. Quantum information transfer using photons. Nature Photonics, 8(5) :356, 2014. 15
- [13] I. Aharonovich, A. D. Greentree, and S. Prawer. Diamond photonics. Nature Photonics, 5(7) :397–405, 2011. 15
- [14] M. Scholz, T. Aichele, S. Ramelow, and O. Benson. Deutsch-jozsa algorithm using triggered single photons from a single quantum dot. Physical Review Letters, 96(18) :180501, 2006. 15
- [15] P. Lodahl, S. Mahmoodian, and S. Stobbe. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures. Reviews of Modern Physics, 87 :347, 2015. 15

- [16] P. W. Shor. Scheme for reducing decoherence in quantum computer memory. Physical review A, 52(4) :R2493, 1995. 15
- [17] M. K. Vandersypen, M. Steffen, G. Breyta, C. S. Yannoni, M. H. Sherwood, and I. L. Chuang. Experimental realization of shor’s quantum factoring algorithm using nuclear magnetic resonance. Nature, 414(6866) :883–887, 2001. 15
- [18] D. Esteve, J.-M. Raimond, and J. Dalibard. Quantum entanglement and information processing : lecture notes of the Les Houches Summer School 2003, volume 79. Elsevier, 2004. 15
- [19] T. Monz, P. Schindler, J. T. Barreiro, M. Chwalla, D. Nigg, W. A. Coish, M. Harlander, W. Hänsel, M. Hennrich, and R. Blatt. 14-qubit entanglement : Creation and coherence. Physical Review Letters, 106(13) :130506, 2011. 15
- [20] J. Kelly, R. Barends, A. G. Fowler, A. Megrant, E. Jeffrey, T. C. White, D. Sank, J. Y. Mutus, B. Campbell, Y. Chen, Z. Chen, B. Chiaro, A. Dunsworth, I.-C. Hoi, C. Neill, P. J. J. O’Malley, C. Quintana, P. Roushan, A. Vainsencher, J. Wenner, A. N. Cleland, and John M. State preservation by repetitive error detection in a superconducting quantum circuit. Nature, 519(7541) :66–69, 2015. 15
- [21] I. M. Stransky and L. von Krastanov. Abhandlungen der mathematisch-naturwissenschaftlichen klasse. akad. Wiss. Lit. Mainz Math.-Naturwiss. Klasse IIb, 146 :797, 1939. 15, 32
- [22] R. C. Ashoori. Electrons in artificial atoms. Nature, 379 :413 – 419, February 1996. 15
- [23] M. A. Kastner. Artificial atoms. Physics Today, 46 :24, 1993. 15
- [24] J.-Y. Marzin, J.-M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, and G. Bastard. Photoluminescence of Single InAs Quantum Dots Obtained by Self-Organized Growth on GaAs. Physical Review Letters, 73 :716, August 1994. 15, 57
- [25] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, and A. Imamoglu. A quantum dot single-photon turnstile device. Science, 290(5500) :2282–2285, 2000. 15
- [26] C. Santori, M. Pelton, G. S. Solomon, Y. Dale, and Y. Yamamoto. Triggered Single Photons from a Quantum Dot. Physical Review Letters, 86 :1502, February 2001. 15, 87
- [27] V. Zwiller, H. Blom, P. Jonsson, N. Panev, S. Jeppesen, T. Tsegaye, E. Goobar, M.-E. Pistol, L. Samuelson, and G. Björk. Single quantum dots emit single photons at a time : Antibunching experiments. Applied Physics Letters, 78(17) :2476–2478, 2001. 15
- [28] C. Santori, D. Fattal, J. Vučković, G. S. Solomon, and Y. Yamamoto. Indistinguishable photons from a single-photon device. Nature, 419 :594–597, October 2002. 15, 87
- [29] J. Beugnon, M. P. A. Jones, J. Dingjan, B. Darquié, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier. Quantum interference between two single photons emitted by independently trapped atoms. Nature, 440 :779–782, April 2006. 15
- [30] F. Dubin, D. Rotter, M. Mukherjee, S. Gerber, and R. Blatt. Single-Ion Two-Photon Source. Physical Review Letters, 99 :183001, October 2007. 15

- [31] P. Maunz, D. L. Moehring, S. Olmschenk, K. C. Younge, D. N. Matsukevich, and C. Monroe. Quantum interference of photon pairs from two remote trapped atomic ions. *Nature Physics*, 3 :538–541, June 2007. **15**
- [32] S. Buckley, K. Rivoire, and J. Vučković. Engineered quantum dot single-photon sources. *Rep. Prog. Phys.*, 75 :126503, November 2012. **15, 87**
- [33] M. N. Makhonin, J. E. Dixon, R. J. Coles, B. Royall, I. J. Luxmoore, E. Clarke, M. Hugues, M. S. Skolnick, and A. Mark Fox. Waveguide Coupled Resonance Fluorescence from On-Chip Quantum Emitter. *Nanoletters*, 14 :6997, November 2014. **15**
- [34] A. Muller, E. B. Flagg, P. Bianucci, X. Y. Wang, D. G. Deppe, W. Ma, J. Zhang, G. J. Salamo, M. Xiao, and C. K. Shih. Resonance Fluorescence from a Coherently Driven Semiconductor Quantum Dot in a Cavity. *Physical Review Letters*, 99 :187402, November 2007. **15, 57**
- [35] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette. Acoustic phonon broadening mechanism in single quantum dot emission. *Physical Review B*, 63(15) :155307, 2001. **16, 125**
- [36] A. J. Ramsay, A. V. Gopal, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, , and M. S. Skolnick. Damping of Exciton Rabi Rotations by Acoustic Phonons in Optically Excited InGaAs/GaAs Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 104 :017402, January 2010. **16, 81, 88, 125**
- [37] J. Houel, A. V. Kuhlmann, L. Greuter, F. Xue, M. Poggio, P. A. Gerardot, B. D. and Dalgarno, A. Badolato, P. M. Petroff, A. Ludwig, D. Reuter, A. D. Wieck, and R. J. Warburton. Probing Single-Charge Fluctuations at a GaAs/AlAs Interface Using Laser Spectroscopy on a Nearby InGaAs Quantum Dot. *Physical Review Letters*, 108 :107401, March 2012. **16, 88, 89, 125**
- [38] A. V. Kuhlmann, J. Houel, A. Ludwig, L. Greuter, D. Reuter, A. D. Wieck, M. Poggio, and R. J. Warburton. Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device. *Nature Physics*, 9 :570–575, July 2013. **16, 89, 125**
- [39] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, Ph. Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gérard. Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nature*, 2 :759–764, November 2006. **16, 81, 91, 125**
- [40] A. Imamoglu, E. Knill, L. Tian, and P. Zoller. Optical Pumping of Quantum-Dot Nuclear Spins. *Physical Review Letters*, 91 :017402, July 2003. **16, 125**
- [41] R. Stockill, C. Le Gall, C. Matthiesen, L. Huthmacher, E. Clarke, M. Hugues, and M. Atatüre. Quantum dot spin coherence governed by a strained nuclear environment. *Nature Communication*, 7 :12745, September 2016. **16, 81, 125**
- [42] R. Melet, V. Voliotis, A. Enderlin, D. Roditchev, X. L. Wang, T. Guillet, and R. Grousson. Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime. *Physical Review B*, 78 :073301, August 2008. **16, 57**
- [43] A. Enderlin, M. Ravaro, V. Voliotis, R. Grousson, and X.-L. Wang. Coherent control of a semiconductor qubit in the strong coupling regime : Impact of energy and phase relaxation mechanisms. *Physical Review B*, 80 :085301, August 2009. **16**

- [44] L. Monniello, C. Tonin, R. Hostein, A. Lemaître, A. Martinez, V. Voliotis, and R. Grousson. Excitation-induced dephasing in a resonantly driven InAs/GaAs quantum dot. Physical Review Letters, 111(2) :026403, July 2013. **16, 88, 89**
- [45] L. Monniello, A. Reigue, R. Hostein, A. Lemaître, A. Martinez, R. Grousson, and V. Voliotis. Indistinguishable single photons generated by a quantum dot under resonant excitation observable without postselection. Physical Review B, 90 :041303(R), July 2014. **16, 58, 59, 71, 76, 101, 125**
- [46] Georgia State University. Semiconductor band gaps (disponible <http://hyperphysics.phy-astr.gsu.edu/hbase/tables/semgap.html>). **23**
- [47] M. Cardona and P.Y. Yu. Fundamentals of semiconductors : Physics and materials properties. Springer, 1996. **23, 25**
- [48] G. Fishman. Semi-conducteurs : les bases de la théorie k.p. Les éditions de l'Ecole Polytechnique, 2010. **23, 25**
- [49] D. Jones and A.H. Lettington. Pseudopotential calculations of the band structure of GaAs, InAs and (GaIn) as alloys. Solid State Communications, 7 :1319–1322, September 1969. **23**
- [50] Tesla Institute. Band structure of III-V and group IV semiconductors (disponible sur <http://www.tesla-institute.com/index.php/electrical-engineering-articles/210-band-structure-of-iii-v-and-group-iv-semiconductors>). **24**
- [51] G. Bastard. Wave Mechanics Applied to Semiconductor Heterostructures. Editions de Physique, 1990. **26**
- [52] F. Laruelle and B. Etienne. Optical investigation of the heavy hole-light hole splitting in thin GaAs/GaAlAs quantum wells. Solid State Communications, 65 :565–569, February 1988. **29**
- [53] O. Brandt, H. Lage, and K. Ploog. Heavy- and light-hole character of optical transitions in InAs/GaAs single-monolayer quantum wells. Physical Review B, 45 :4217, February 1992. **30**
- [54] C. Tonin, R. Hostein, V. Voliotis, R. Grousson, A. Lemaître, and A. Martinez. Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots. Physical Review B, 85 :155303, April 2012. **31, 74**
- [55] J.-Y. Marzin and G. Bastard. Calculation of the energy levels in {InAs}/{GaAs} quantum dots. Solid State Communications, 92 :437–442, November 1994. **31**
- [56] A. Vasanelli, M. De Giorgi, R. Ferreira, R. Cingolani, and G. Bastard. Energy levels and far-infrared absorption of multi-stacked dots. Physica E Low-Dimensional Systems and Nanostructures, 11 :41–50, September 2001. **31**
- [57] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. André, and O. Vatel. Self-organized growth of regular nanometer-scale InAs dots on GaAs. Applied Physics Letter, 64 :196, November 1993. **32**
- [58] D. M. Bruls, J. W. A. M. Vugs, P. M. Koenraad, H. W. M. Salemink, J. H. Wolter, M. Hopkinson, M. S. Skolnick, Fei Long, and S. P. A. Gill. Determination of the shape and indium distribution of low-growth-rate InAs quantum dots by cross-sectional scanning tunneling microscopy. Applied Physics Letter, 81 :1708, July 2002. **32**

- [59] M. Combescot and S.-Y. Shiao. Excitons and Cooper Pairs : Two Composite Bosons in Many-Body P Oxford University Press, 2016. [33](#), [36](#)
- [60] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. Mécanique Quantique I. Hermann, 1977. [34](#)
- [61] M. Bayer, G. Ortner, O. Stern, A. Kuther, A. A. Gorbunov, A. Forchel, P. Hawrylak, S. Fafard, K. Hinzer, T. L. Reinecke, S. N. Walck, J. P. Reithmaier, F. Klopff, and F. Schäfer. Fine structure of neutral and charged excitons in self-assembled In(Ga)As/(Al)GaAs quantum dots. Physical Review B, 65 :195315, May 2002. [36](#), [37](#), [73](#)
- [62] J. M. Smith, P. A. Dalgarno, R. J. Warburton, A. O. Govorov, K. Karrai, B. D. Gerardot, and Petroff P. M. Voltage Control of the Spin Dynamics of an Exciton in a Semiconductor Quantum Dot. Physical Review Letters, 94 :197402, May 2005. [37](#), [77](#)
- [63] J. Johansen, B. Julsgaard, S. Stobbe, J. M. Hvam, and Lodahl P. Probing long-lived dark excitons in self-assembled quantum dots. Physical Review B, 81 :081304(R), February 2012. [37](#), [77](#)
- [64] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, and R. Combescot. Bose-einstein condensation in semiconductors : The key role of dark excitons. Physical Review Letters, 99(17) :176403, 2007. [37](#)
- [65] R. Combescot and M. Combescot. “gray” bcs condensate of excitons and internal josephson effect. Physical review letters, 109(2) :026401, 2012. [37](#)
- [66] M. Beian, M. Alloing, R. Anankine, E. Cambril, K. Merghem, C. Gomez Carbonell, A. Lemaître, and F. Dubin. Spectroscopic Signatures for Bose-Einstein Condensation of Dark Excitons in a Trap. Arxiv, 1506.08020, 2015. [37](#)
- [67] R. Anankine, S. Dang, M. Beian, E. Cambril, K. Merghem, C. Gomez Carbonell, A. Lemaître, and F. Dubin. Temporal Coherence of a Homogeneously Broadened Gas of Spatially Indirect Excitons and “Gray” Bose-Einstein Condensation. Arxiv, 1610.05055, 2016. [37](#)
- [68] R. Anankine, M. Beian, S. Dang, M. Alloing, E. Cambril, K. Merghem, C. Gomez Carbonell, A. Lemaître, and F. Dubin. Quantized Vortices and Four-Component Superfluidity of Semiconductor Excitons. Physical Review Letters, 118 :127402, March 2017. [37](#)
- [69] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, and D. Park. Fine Structure Splitting in the Optical Spectra of Single GaAs Quantum Dots. Physical Review Letters, 76 :3005, April 1996. [37](#), [73](#)
- [70] R. Seguin, A. Schliwa, S. Rodt, K. Pötschke, U. W. Pohl, and D. Bimberg. Size-Dependent Fine-Structure Splitting in Self-Organized InAs/GaAs Quantum Dots. Physical Review Letters, 95 :257402, December 2005. [37](#), [73](#)
- [71] R. J. Warburton, C. Schäfflein, D. Haft, F. Bickel, A. Lorke, K. Karrai, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff. Optical emission from a charge-tunable quantum ring. Nature, 405 :926–929, June 2000. [38](#), [133](#), [134](#), [135](#)
- [72] N. A. J. M. Kleemans, J. van Bree, A. O. Govorov, J. G. Keizer, G. J. Hamhuis, R. Nötzel, A. Yu. Silov, and P. M. Koenraad. Many-body exciton states in self-assembled quantum dots coupled to a Fermi sea. Nature, 6 :534–538, May 2010. [38](#), [133](#), [134](#), [135](#), [142](#)

- [73] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. Processus d'interaction entre photons et atomes. CNRS edition, 2001. 39, 105
- [74] G. Grynberg, A Aspect, and C. Fabre. Introduction aux laser et à l'optique quantique. Ellipses, 1997. 41
- [75] K. A. Fischer, L. Hanschke, J. Wierzbowski, T. Simmet, C. Dory, J.J. Finley, J. Vučković, and K. Müller. Signatures of two-photon pulses from a quantum two-level system. Nature Physics, 22 :to be publish..., February 2017. 46, 76
- [76] L. Mandel and E. Wolf. Optical coherence and quantum optics, chapter 10. Cambridge University Press, 1995. 47
- [77] A. J. Leggett, S. Chakravarty, A. T. Dorsey, M. P. A. Fisher, A. Garg, and W. Zwerger. Dynamics of the dissipative two-state system. Reviews of Modern Physics, 59 :1, January 1987. 48, 107, 171, 187
- [78] H.-P. Breuer and F. Petruccione. The theory of open quantum systems, chapter 3. Oxford University Press, 2002. 48, 51, 52, 163, 165, 182
- [79] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. Photons et Atomes - Introduction à l'Electrodynamique Quantique, chapter 3. CNRS edition, 1987. 48, 174
- [80] L. C. Andreani, G. Panzarini, and J.-M. Gérard. Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : Theory. Physical Review B, 60(19) :13276, 1999. 51
- [81] D. A. Steck. Quantum and atom optics (disponible sur <http://steck.us/teaching>), 2006. 52, 113, 177, 182
- [82] J. W. Goodman. Statistical Optics, chapter 3. Wiley-Blackwell, 2000. 52, 113, 177
- [83] T. S. Sosnowski, T. B. Norris, H. Jiang, J. Singh, K. Kamath, and P. Bhattacharya. Rapid carrier relaxation in In<sub>0.4</sub>Ga<sub>0.6</sub>As/GaAs quantum dots characterized by differential transmission spectroscopy. Physical Review B, 57 :9423(R), April 1998. 57
- [84] J. Siegert, S. Marcinkevičius, and Q. X. Zhao. Carrier dynamics in modulation-doped InAs/GaAs quantum dots. Physical Review B, 72 :085316, August 2005. 57
- [85] D. Elvira, R. Hostein, B. Fain, L. Monniello, A. Michon, G. Beaudoin, R. Braive, I. Robert-Philip, I. Abram, I. Sagnes, and A. Beveratos. Single InAs<sub>1-x</sub>P<sub>x</sub>/InP quantum dots as telecommunications-band photon sources. Physical Review B, 84 :195302, November 2011. 58
- [86] C. H. H. Schulte, J. Hansom, A.E. Jones, C. Matthiesen, C. Le Gall, and M. Atatüre. Quadrature squeezed photons from a two-level system. Nature, 525 :22–225, September 2015. 59, 60
- [87] R. Proux, M. Maragkou, E. Baudin, C. Voisin, P. Roussignol, and C. Diederichs. Measuring the Photon Coalescence Time Window in the Continuous-Wave Regime for Resonantly Driven Semiconductor Quantum Dots. Physical Review Letters, 114(6) :067401, February 2015. 60, 76, 77

- [88] X. Ding, Duan Z.-C. He, Y. and, N. Gregersen, M.-C. Chen, S. Unsleber, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan. On-Demand Single Photons with High Extraction Efficiency and Near-Unity Indistinguishability from a Resonantly Driven Quantum Dot in a Micropillar. *Physical Review Letters*, 116 :020401, January 2016. [68](#), [87](#)
- [89] A. Moelbjerg, P. Kaer, M. Lorke, and J. Mørk. Resonance Fluorescence from Semiconductor Quantum Dots : Beyond the Mollow Triplet. *Physical Review Letters*, 108 :017401, January 2012. [68](#)
- [90] H. S. Nguyen, G. Sallen, C. Voisin, P. Roussignol, C. Diederichs, and G. Cassabois. Optically Gated Resonant Emission of Single Quantum Dots. *Physical Review Letters*, 108 :057401, January 2012. [71](#), [101](#), [125](#)
- [91] H. S. Nguyen, G. Sallen, M. Abbarchi, R. Ferreira, C. Voisin, P. Roussignol, G. Cassabois, and C. Diederichs. Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy. *Physical Review B*, 87 :115305, March 2013. [71](#), [125](#)
- [92] D. Chen, G. R. Lander, K. S. Krowpman, G. S. Solomon, and E. B. Flag. Characterization of the local charge environment of a single quantum dot via resonance fluorescence. *Physical Review B*, 93 :115307, March 2016. [71](#), [88](#), [101](#), [125](#)
- [93] T. Belhadj, T. Amand, A. Kunold, C.-M. Simon, T. Kuroda, M. Abbarchi, T. Mano, K. Sakoda, S. Kunz, X. Marie, and B. Urbaszek. Impact of heavy hole-light hole coupling on optical selection rules in GaAs quantum dots. *Applied Physics Letter*, 97 :051111, August 2010. [74](#)
- [94] S. Ohno, S. Adachi, R. Kaji, S. Muto, and H. Sasakura. Optical anisotropy and photoluminescence polarization in single InAlAs quantum dots. *Applied Physics Letter*, 98 :161912, April 2011. [74](#)
- [95] J. Bylander, I. Robert-Philip, and I. Agrama. Interference and correlation of two independent photons | The European Physical Journal D (EPJ D). *The European Physical Journal D*, 22 :295–301, 2003. [74](#), [98](#)
- [96] R. H. Brown and R. Q. Twiss. The Question of Correlation between Photons in Coherent Light Rays. *Nature*, 178 :1447–1448, December 1956. [74](#)
- [97] R. Loudon. *The quantum theory of light*, chapter 6.8. Oxford University Press, 1973. [81](#)
- [98] Z. Y. Ou, C. K. Hong, and L. Mandel. Violations of locality in correlation measurements with a beam splitter. *Physics Letters A*, 122 :11–13, May 1987. [81](#)
- [99] C. K. Hong, Z. Y. Ou, and L. Mandel. Measurement of subpicosecond time intervals between two photons by interference. *Physical Review Letters*, 59, November 1987. [81](#)
- [100] M. A. Nielsen and I. L. Chuang. *Quantum Computation and Quantum Information*. Cambridge University Press, 2000. [87](#)
- [101] F. Henneberger and O. Benson. *Semiconductor Quantum Bits*. Pan Stanford, 2008. [87](#)
- [102] Y.-M. He, Y. He, Y.-J. Wei, D. Wu, M. Atatüre, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, C.-Y. Lu, and J.-W. Pan. On-demand semiconductor single-photon source with near-unity indistinguishability. *Nature Nanotechnology*, 8 :213–217, February 2013. [87](#)

- [103] O Gazzano, S Michaelis De Vasconcellos, C Arnold, A Nowak, E Galopin, I Sagnes, L Lanco, A Lemaître, and P Senellart. Bright solid-state sources of indistinguishable single photons. Nature Communications, 4 :1425, 2013. [87](#), [101](#), [125](#)
- [104] E. M. Purcell. Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies. Physical Review, 69 :681, 1946. [87](#)
- [105] W. B. Gao, A. Imamoglu, H. Bernien, and R. Hanson. Coherent manipulation, measurement and entanglement of individual solid-state spins using optical fields. Nature, 9 :363–373, June 2015. [87](#)
- [106] A. Thoma, P. Schnauber, M. Gschrey, M. Seifried, J. Wolters, J. H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, A. Carmele, A. Knorr, T. Heindel, and S. Reitzenstein. Exploring Dephasing of a Solid-State Quantum Emitter via Time- and Temperature-Dependent Hong-Ou-Mandel Experiments. Physical Review Letters, 116 :033601, January 2016. [87](#), [101](#)
- [107] A. Kurzman, B. Merkel, P. A. Labud, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Lorke, and M. Geller. Optical Blocking of Electron Tunneling into a Single Self-Assembled Quantum Dot. Physical Review Letters, 117 :017401, June 2016. [87](#), [133](#), [134](#), [141](#)
- [108] G. D. Mahan. Many-Partical Physics (third edition), chapter 1. Kluwer Academic / Plenum Publisher, 2000. [88](#), [105](#)
- [109] H. Bruus and K. Flensberg. Introduction to Many-body quantum theory in condensed matter physics, chapter 3. Oxford Graduate Texts, 2002. [88](#), [104](#), [105](#)
- [110] M. Grundmann, O. Stier, and D. Bimberg. InAs/GaAs pyramidal quantum dots : Strain distribution, optical phonons, and electronic structure. Physical Review B, 52 :11969, October 1995. [88](#), [104](#)
- [111] A. J. Ramsay, T. M. Godden, S. J. Boyle, E. M. Gauger, A. Nazir, B. W. Lovett, A. M. Fox, , and M. S. Skolnick. Phonon-Induced Rabi-Frequency Renormalization of Optically Driven Single InGaAs/GaAs Quantum Dots. Physical Review Letters, 105 :177402, October 2010. [88](#)
- [112] P.-F. Braun, X. Marie, L. Lombez, B. Urbaszek, T. Amand, P. Renucci, V. K. Kalevich, K. V. Kavokin, O. Krebs, P. Voisin, and Y. Masumoto. Direct Observation of the Electron Spin Relaxation Induced by Nuclei in Quantum Dots. Physical Review Letters, 94 :116601, March 2005. [89](#), [127](#)
- [113] C. Arnold, V. Loo, A. Lemaître, I. Sagnes, O. Krebs, P. Voisin, P. Senellart, and L. Lanco. Cavity-Enhanced Real-Time Monitoring of Single-Charge Jumps at the Microsecond Time Scale. Physical Review X, 4 :021004, April 2014. [88](#), [90](#), [100](#)
- [114] R. N. E. Malein, T. S. Santana, J. M. Zajac, A. C. Dada, E. M. Gauger, P. M. Petroff, J. Y. Lim, J. D. Song, and B. D. Gerardot. Screening Nuclear Field Fluctuations in Quantum Dots for Indistinguishable Photon Generation. Physical Review Letters, 116 :257401, June 2016. [89](#)
- [115] T. Takagahara. Theory of exciton dephasing in semiconductor quantum dots. Physical Review B, 60 :2638, July 1999. [89](#)

- [116] A. Kiraz, M. Atatüre, and A. Imamoglu. Quantum-dot single-photon sources : Prospects for applications in linear optics quantum-information processing. Physical Review A, 69 :032305, March 2004. 91, 93, 94
- [117] L. Mandel and E. Wolf. Optical coherence and quantum optics, chapter 11.12. Cambridge University Press, 1995. 92, 178
- [118] R. Loudon. The quantum theory of light, chapter 4.12. Oxford University Press, 1973. 92, 178
- [119] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. Processus d'interaction entre photons et atomes, chapter A<sub>II</sub>. CNRS edition, 2001. 92, 178
- [120] A. Zeilinger. General properties of lossless beam splitters in interferometry. American Journal of Physics, 49 :882–883, September 1981. 93
- [121] A. Reigues, J. Iles-Smith, F. Lux, L. Monniello, M. Bernard, F. Margailan, A. Lemaître, A. Martinez, D. P. S. McCutcheon, J. Mørk, R. Hosten, and V. Voliotis. Probing electron-phonon interaction through two-photon interference in resonantly driven semiconductor quantum dots. Physical Review Letters, 118 :233602, June 2017. 99, 115, 205
- [122] H. Wang, Z. C. Duan, Y. H. Li, Si Chen, J. P. Li, Y. M. He, M. C. Chen, Yu He, X. Ding, Cheng Z. Peng, Christian Schneider, Martin Kamp, Sven Höfling, Chao Y. Lu, and Jian W. Pan. Near-Transform-Limited Single Photons from an Efficient Solid-State Quantum Emitter. Physical Review Letters, 116 :213601, May 2016. 100, 101
- [123] M. R. Delbecq, T. Nakajima, P. Stano, T. Otsuka, S. Amaha, J. Yoneda, K. Takeda, G. Allison, A. Ludwig, A. D. Wieck, and S. Tarucha. Quantum Dephasing in a Gated GaAs Triple Quantum Dot due to Nonergodic Noise. Physical Review Letters, 116 :046802, January 2016. 100
- [124] A. Nazir and D. P. S. McCutcheon. Modelling exciton–phonon interactions in optically driven quantum dots. Journal of Physics : Condensed Matter, 28(10) :103002, 2016. 104, 105, 111, 175, 189
- [125] E. A. Muljarov and R. Zimmermann. Dephasing in Quantum Dots : Quadratic Coupling to Acoustic Phonons. Physical Review Letters, 93 :237401, November 2004. 105, 107
- [126] P. Kaer, T. R. Nielsen, P. Lodahl, A.-P. Jauho, and J. Mørk. Microscopic theory of phonon-induced effects on semiconductor quantum dot decay dynamics in cavity QED. Physical Review B, 86 :085302, August 2012. 106, 110
- [127] G. D. Mahan. Many-Partical Physics (third edition), chapter 4. Kluwer Academic / Plenum Publisher, 2000. 106
- [128] A. Würger. Strong-coupling theory for the spin-phonon model. Physical Review B, 57 :347, January 1998. 110
- [129] I. Wilson-Rae and A. Imamoglu. Quantum dot cavity-QED in the presence of strong electron-phonon interactions. Physical Review B, 65 :235311, May 2002. 110
- [130] C. Roy and S. Hughes. Polaron master equation theory of the quantum-dot Mollow triplet in a semiconductor cavity-QED system. Physical Review B, 85 :115309, March 2012. 110

- [131] T. Grange, N. Somaschi, C. Antón, L. De Santis, G. Coppola, V. Giesz, A. Lemaître, I. Sagnes, A. Auffèves, and P. Senellart. Reducing Phonon-Induced Decoherence in Solid-State Single-Photon Sources with Cavity Quantum Electrodynamics. Physical Review Letters, 118 :253602, June 2017. 120, 153
- [132] A. Reinhard, T. Volz, M. Winger, A. Badolato, K. J. Hennessy, E. L. Hu, and A. Imamoglu. Strongly correlated photons on a chip. Nature Photonics, 6 :93–96, December 2012. 125
- [133] M. Grundmann and D. Bimberg. Theory of random population for quantum dots. Physical Review B, 55 :9740, April 1997. 127
- [134] G. Muñoz Matutanoa, J. Gomis, B. Alén, J. Martínez-Pastor, L. Seravalli, P. Frigeri, and S. Franchi. Exciton, biexciton and trion recombination dynamics in a single quantum dot under selective optical pumping. Physica E, 40 :2100–2103, April 2008. 127
- [135] M. Abbarchi, C. Mastrandrea, T. Kuroda, T. Mano, A. Vinattieri, K. Sakoda, and M. Gurioli. Poissonian statistics of excitonic complexes in quantum dots. Applied Physics Letter, 106 :053504, September 2009. 127
- [136] J. Gomis, G. Muñoz Matutanoa, J. Martínez-Pastor, B. Alén, L. Seravalli, P. Frigeri, G. Trevisi, and S. Franchi. Random population model to explain the recombination dynamics in single InAs/GaAs quantum dots under selective optical pumping. New Journal of physics, 13 :023022, February 2011. 127
- [137] P.-F. Braun, B. Eble, L. Lombez, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, P. Renucci, O. Krebs, A. Lemaître, P. Voisin, V. K. Kalevich, and K. V. Kavokin. Spin relaxation of positive trions in InAs/GaAs quantum dots : the role of hyperfine interaction. Physica Status Solidi, 243 :3917, October 2006. 127, 128
- [138] B. Elbe. Interaction hyperfine dans les boîtes quantiques d’InAs/GaAs sous pompage optique orienté. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2006. 128
- [139] S. Laurent, B. Eble, O. Krebs, A. Lemaître, B. Urbaszek, X. Marie, T. Amand, and P. Voisin. Electrical Control of Hole Spin Relaxation in Charge Tunable InAs/GaAs Quantum Dots. Physical Review Letters, 94 :147401, April 2005. 128
- [140] C. Tonin. Manipulation cohérente de l’émission résonante d’une boîte quantique unique. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2012. 129
- [141] G. Bester and A. Zunger. Compositional and size-dependent spectroscopic shifts in charged self-assembled  $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}/\text{GaAs}$  quantum dots. Physical Review B, 68 :073309, August 2003. 133
- [142] M. Gong, K. Duan, C.-F. Li, R. Magri, G. A. Narvaez, and L. He. Electronic structure of self-assembled InAs/InP quantum dots : Comparison with self-assembled InAs/GaAs quantum dots. Physical Review B, 77 :045326, January 2008. 133
- [143] J. A. Andrade, A. A. Aligia, and P. S. Cornaglia. Many-body dynamics of the decay of excitons of different charges in a quantum dot. Physical Review B, 94 :235109, December 2016. 133, 142
- [144] J. M. Smith, P. A. Dalgarno, B. Urbaszek, E. J. McGhee, G. S. Buller, G. J. Nott, R. J. Warburton, J. M. Garcia, W. Schoenfeld, and P. M. Petroff. Carrier storage and capture

- dynamics in quantum-dot heterostructures. Applied Physics Letters, 82 :3761, March 2003. [133](#), [134](#), [135](#)
- [145] P. A. Dalgarno, M. Ediger, B. D. Gerardot, J. M. Smith, S. Seidl, M. Kroner, K. Karrai, P. M. Petroff, A. O. Govorov, and R. J. Warburton. Optically Induced Hybridization of a Quantum Dot State with a Filled Continuum. Physical Review Letters, 100 :176801, April 2008. [133](#), [142](#), [143](#)
- [146] M. Baier, F. Findeis, A. Zrenner, M. Bichler, and G. Abstreiter. Optical spectroscopy of charged excitons in single quantum dot photodiodes. Physical Review B, 64 :195326, October 2001. [134](#), [135](#)
- [147] R. J. Warburton, B. T. Miller, C. S. Dürr, C. Bödefeld, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P. M. Petroff, and S. Huant. Coulomb interactions in small charge-tunable quantum dots : A simple model. Physical Review B, 58 :16221, December 1998. [135](#)
- [148] S.D. Brorson, H. Yokoyama, and E.P. Ippen. Spontaneous emission rate alteration in optical waveguide structures. IEEE Journal of Quantum Electronics, 26 :1492, September 1990. [136](#)
- [149] H. Yokoyama and K. Ujihara. Spontaneous Emission and Laser Oscillation in Microcavities. CRC Press, 1995. [136](#)
- [150] R. Al-Khuzheyri, A. C. Dada, J. Huwer, T. S. Santana, J. Skiba-Szymanska, M. Felle, M. B. Ward, R. M. Stevenson, I. Farrer, M. G. Tanner, R. H. Hadfield, D. A. Ritchie, A. J. Shields, and B. D. Gerardot. Resonance fluorescence from a telecom-wavelength quantum dot. Applied Physics Letters, 109 :163104, October 2016. [141](#)
- [151] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg. Processus d'interaction entre photons et atomes, chapter C<sub>1</sub>. CNRS edition, 2001. [141](#)
- [152] L. M. León Hilario and A. A. Aligia. Photoluminescence of a Quantum Dot Hybridized with a Continuum of Extended States. Physical Review Letters, 103 :156802, October 2009. [142](#)
- [153] A. O. Govorov, K. Karrai, and R. J. Warburton. Kondo excitons in self-assembled quantum dots. Physical Review B, 67 :241307(R), June 2003. [142](#)
- [154] P. W. Anderson. Localized magnetic states in metals. Physical Review, 124(1) :41, 1961. [142](#)
- [155] M. Combescot, O. Betbeder-Matibet, and V. Voliotis. Electron teleportation between quantum dots using virtual dark exciton. EPL (Europhysics Letters), 74(5) :868, 2006. [154](#)
- [156] P. Atkinson, E. Zallo, and O. G. Schmidt. Independent wavelength and density control of uniform gaas/algaas quantum dots grown by infilling self-assembled nanoholes. Journal of Applied Physics, 112(5) :054303, 2012. [154](#)
- [157] A. Mysyrowicz, D. Hulin, A. Antonetti, A. Migus, W. T. Masselink, and H. Morkoc. "dressed excitons" in a multiple-quantum-well structure : evidence for an optical stark effect with femtosecond response time. Physical Review Letters, 56(25) :2748, 1986. [155](#)
- [158] A. G. Redfield. The Theory of Relaxation Processes, volume 1, pages 1–32. Elsevier, 1965. [165](#)
- [159] D. P. S. McCutcheon. Optical signatures of non-Markovian behavior in open quantum systems. Physical Review A, 93 :022119, February 2016. [183](#)

- 
- [160] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. Mécanique Quantique I, chapter  $E_V$ . Hermann, 1977. [188](#), [191](#)
- [161] R. J. Glauber. Coherent and incoherent states of the radiation field. Physical Review, 131 :2766, September 1963. [189](#)
- [162] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. Mécanique Quantique I, chapter  $G_V$ . Hermann, 1977. [189](#)
- [163] J. Iles-Smith, D. P. S. McCutcheon, A. Nazir, and J. Mørk. Phonon scattering inhibits simultaneous near-unity efficiency and indistinguishability in semiconductor single-photon sources. Nature Photonics, 11(8) :521–526, 2017. [201](#), [203](#), [205](#)