



**HAL**  
open science

# Spectroscopie cohérente non-linéaire de boîtes quantiques uniques dans des nanostructures photoniques

Quentin Mermillod

► **To cite this version:**

Quentin Mermillod. Spectroscopie cohérente non-linéaire de boîtes quantiques uniques dans des nanostructures photoniques. Physique Quantique [quant-ph]. Université Grenoble Alpes, 2016. Français. NNT: . tel-01355121

**HAL Id: tel-01355121**

**<https://hal.science/tel-01355121>**

Submitted on 23 Aug 2016

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

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

## **THÈSE**

Pour obtenir le grade de

### **DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : **Physique de la matière condensée et du rayonnement**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

**Quentin MERMILLOD-ANSELME**

Thèse dirigée par **Jacek KASPRZAK**

préparée au sein du **Laboratoire de l'Institut Néel, CNRS**  
dans **l'École Doctorale de Physique**

## **Spectroscopie cohérente non- linéaire de boîtes quantiques uniques dans des nanostructures photoniques**

Thèse soutenue publiquement le **18 Mai 2016**,  
devant le jury composé de :

**Pr. Benoît BOULANGER**

Professeur à l'Université Grenoble Alpes, Président

**Pr. Maria CHAMARRO**

Professeur à l'Université Pierre et Marie CURIE, Rapporteur

**Dr. Pierre GILLIOT**

Directeur de Recherche à l'Institut de Physique et de Chimie des  
Matériaux de Strasbourg, Rapporteur

**Pr. Benoît DEVEAUD-PLEDRAN**

Professeur à l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Examineur

**Dr. Yoan LEGER**

Chargé de Recherche à l'Institut National des Sciences Appliquées de  
Rennes, Examineur

**Dr. Jacek KASPRZAK**

Chargé de Recherche à l'Institut Néel, Directeur de thèse





# Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé dans le département NANO du Laboratoire de l'Institut Néel de Grenoble, au sein de l'équipe mixte CEA-CNRS "Nanophysique et Semiconducteurs" (NPSC). Je remercie tout particulièrement Henri Mariette, et son successeur Régis André, pour m'avoir accueilli au sein de cette grande famille. Un grand merci à Régis pour ses nombreux conseils et pour m'avoir épaulé durant la dernière année de ma thèse. À bientôt dans les montagnes. Je remercie également Alain Schuhl et son successeur Étienne Bustarret, ancien et actuel directeurs de l'Institut Néel, pour leur dévouement à faire avancer la recherche publique et permettre aux chercheurs Grenoblois de mener à bien leurs travaux dans les meilleures conditions possibles.

Je suis très reconnaissant à Pierre Gilliot et Maria Chamarro d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse ainsi qu'à Benoît Deveaud-Plédran, Yoann Léger et Benoît Boulanger pour leur participation à mon jury.

Ce travail a été encadré par Jacek Kasprzak dans le cadre d'un programme de recherche européen *ERC starting grant*. J'exprime un immense sentiment de gratitude à Jacek pour m'avoir donné l'opportunité de débiter avec lui ce projet et de développer une expérience unique. La confiance et la liberté qu'il m'a données m'ont été particulièrement bénéfiques pour mener à bien ce projet. Ses conseils d'expérimentateur hors pair et acharné m'auront fait progresser de jour en jour pour relever ce challenge. Je me souviendrai longtemps du soir où le premier pic de signal est apparu, et de son fameux "champagne" ! Merci pour son soutien et la transmission de son savoir au fil de ces années.

Je suis également très reconnaissant envers Gilles Nogues, véritable puits de connaissances, pour toutes les discussions et conseils avisés en optique, informatique, électronique, physique et j'en passe... Sans lui je serai encore bloqué dans les lignes de codes. Un grand merci également à Émilien Durupt, ancien thésard et grand frère de manipe, pour m'avoir appris à me "battre" avec la manipe et pour m'avoir sorti du pétrin plus d'une fois. Merci à François Fras pour avoir partagé des soirées de manipe et des parties de tennis. Merci également à Thomas Grange pour m'avoir aidé à mieux comprendre le côté obscur des phonons, et pour m'avoir fait gagner des doubles contre François et Jean-Philippe Poizat. Je remercie chaleureusement tous les permanents de l'équipe NPSC. Merci notamment à Lucien Besombes, David Ferrand et Jean-Philippe Poizat pour toutes les discussions que l'on a pu avoir à table ou au détour d'un café, leurs connaissances et leurs compétences scientifiques m'auront été d'une précieuse aide. Merci également à Le-Si Dang, père spirituel de l'équipe, pour m'avoir accueilli et vanté les mérites de son jeune Padawan. Un grand merci aux collègues du CEA-INAC, Jean-Michel Gérard et Julien Claudon avec qui j'ai collaboré. Merci Julien pour les "petites virées de psychopathes" dans les Alpes, on remet ça quand tu veux.

Je tiens également à remercier tous les ITA du laboratoire pour leur disponibilité et leur amabilité, sans qui rien n'aurait été possible. En particulier Christophe Hoarau du pôle électronique, Fabrice Donatini, David Jegouso et Simon Le-Denmat du pôle optique et microscopies, Édouard Wagner du pôle automatisation, Patrick Belmain et Laurent Joubert du service informatique, Laurent Del-Rey, Didier Dufeu et Julien Jarreau du pôle ingénierie expérimentale, Philippe Jacquet du SERAS, Sabine Gadad et Florence Pois du service administratif, ainsi que Mathilde Mauro et Caroline Bartoli du service de gestion financière.

Merci à tous les thésards, ex-thésards, et postdocs que j'ai pu croiser pendant toutes ces années. En particulier, un grand merci à la *dream team* germano/russe/polonaise composée de Emanuel Peinke (Manu), Tobias Sattler (Tobi), Petr Stepanov (Peter) et Tomasz Jakubczyk (Tomek) pour avoir mis la bonne ambiance à toutes les soirées, pour vos accents ravageurs, pour les sorties de ski de rando matinales ou nocturnes, pour les sorties de VTT à fond de cale, pour les baignades dans les fontaines Grenobloises et pour tout le reste. Merci Tomek de ne pas m'avoir jeté au fond d'un canyon à Moab. La thèse est d'autant plus difficile que l'on ne choisit pas ses collègues d'open space. C'est pourquoi je remercie le pauvre Mathieu Jeannin pour avoir supporté mon ironie et mes sarcasmes machiavéliques quotidiens de thésard en fin de thèse. Un jour tu flasheras des rouges à Ablok (c'est ironique). Merci à Hoai-anh Nguyen pour être resté rédiger jusqu'à pas d'heure avec moi et surtout pour le 6-0 contre Thomas et JPP (son directeur de thèse!), bon retour au Vietnam. Merci à Alberto pour son accent et sa bonne humeur à l'italienne, profite bien de ta petite Maya et à bientôt en Italie. Merci également à tous les anciens thésards/postdocs de l'équipe que j'ai parfois eu le plaisir de croiser en conférence, je pense à : Samir Bounouar, Pierre-Louis De Assis, Adrien Delga, Igor Diniz, Sebastian Klembt, François Médard, Mathieu Munsch, Stefano Portolan, Grégory Sallen, Aurélien Trichet, Daniel Valente et Inah Yeo. Ainsi qu'aux nouveaux venus : Alastair Abbott, Cyril Branchard, Thibault Crémel, Valentin Delmonte, Cyril Elouard, David Herrera-Martí, Gaston Hornecker, Alban Lafuente-Sampietro, Bogdan Reznichenko et Dimitrii Tumanov.

La vie professionnelle n'étant rien sans une vie sociale pleine de rebondissements, je remercie tous mes collègues avec qui j'ai vécu des moments intenses en montagne ou autour d'une bonne bière. En particulier, je remercie Antoine (dis la Machette!) pour ses jeux de mots pas drôles et pour m'avoir ouvert une bière tous les soirs à mon insu pour se déculpabiliser de sa débauche personnelle. Merci à Flo, XY et Ben pour les trips festi-grimpe-slack et les soirées frometons-nanars : longue vie au "paindu" ! Merci à Charles ("Dr. Sérac") pour m'avoir vendu du rêve en toutes circonstances, à Max pour le logo d'Hydroven, à Damien, Rémi, et Renan pour m'avoir suivi de Belledonne au fin fond des Écrins et de la Maurienne, ainsi qu'à Alvin, mauricien/franco/italien, pour sa délicieuse recette aux crevettes, courage c'est bientôt la fin !

Pour finir je remercie chaleureusement ma famille et bien sûr mes parents pour m'avoir transmis leurs valeurs et donné l'opportunité de poursuivre des études. Ironie du sort pour un enfant qui n'aimait pas l'école... Merci à ma sœur Julie d'avoir mis à dispositions ses talents littéraires pour combler mes lacunes grammaticales. Enfin, mes derniers mots sont pour mon Amour, ma raison d'être. Merci Anouchka de m'avoir supporté et soutenu durant toutes ces années, sans toi je n'en serais pas là. Merci pour tout.

# Table des matières

<b>Table des figures</b>	<b>ix</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Interaction lumière-matière d'un émetteur quantique</b>	<b>5</b>
1.1 Propriétés des boîtes quantiques semiconductrices . . . . .	6
1.1.1 Réduction de dimensionnalité . . . . .	6
1.1.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques . . . . .	7
1.2 Cadre théorique . . . . .	9
1.2.1 Équations de Bloch optiques d'un système à deux niveaux . . . . .	9
1.2.2 Cohérences et populations . . . . .	11
1.2.3 Développement perturbatif de la matrice densité . . . . .	12
1.2.4 Solution analytique pour deux impulsions : FWM dégénéré . . . . .	13
1.2.5 Solution analytique pour trois impulsions : FWM non-dégénéré . . . . .	15
1.3 Vecteur de Bloch . . . . .	17
1.3.1 Précession du vecteur de Bloch . . . . .	17
1.3.2 Solution sans relaxation : oscillations de Rabi . . . . .	18
1.3.3 Solution sans champ électrique : évolution libre . . . . .	19
<b>2 Mélange à quatre ondes hétérodyne d'une boîte quantique unique</b>	<b>21</b>
2.1 Contexte et motivations . . . . .	22
2.1.1 FWM d'un ensemble de boîtes quantiques . . . . .	22
2.1.2 FWM d'une boîte quantique unique . . . . .	24
2.2 Dispositif expérimental : Mélange à quatre ondes hétérodyne . . . . .	25
2.2.1 Correction du <i>chirp</i> . . . . .	25
2.2.1.1 Autocorrélation en intensité . . . . .	30
2.2.2 Excitation de l'échantillon . . . . .	31
2.2.2.1 Couplage avec l'échantillon . . . . .	31
2.2.2.2 Nanopositionnement et imagerie hyperspectrale . . . . .	33
2.2.3 Détection du signal . . . . .	34
2.2.3.1 Collection du signal . . . . .	34
2.2.3.2 Hétérodynage optique . . . . .	34
2.2.3.3 Interférométrie spectrale . . . . .	38
2.2.3.4 Détection balancée . . . . .	38
2.2.3.5 Réponse temporelle du spectromètre . . . . .	43
2.3 Échantillons : Microcavités optiques planaires . . . . .	45
2.3.1 Confinement de la lumière dans une microcavité optique . . . . .	45
2.3.2 Description des échantillons . . . . .	46
2.4 Conclusion . . . . .	49

<b>3 Mécanismes de décohérence d'excitons individuels</b>	<b>51</b>
3.1 Contrôle cohérent optique d'un exciton unique . . . . .	52
3.1.1 Oscillations de Rabi de la polarisation d'un exciton . . . . .	52
3.1.2 Absorption et saturation des populations d'un exciton . . . . .	56
3.2 Dynamiques des populations et des cohérences d'excitons individuels . . . . .	57
3.2.1 Limite radiative . . . . .	57
3.2.2 Diffusion spectrale : élargissement inhomogène de la raie . . . . .	59
3.3 Mécanismes de décohérence d'un exciton unique . . . . .	62
3.3.1 Déphasage pur d'un exciton unique . . . . .	62
3.3.2 Déphasage induit par les phonons acoustiques . . . . .	63
3.3.2.1 Phonons optiques et acoustiques . . . . .	63
3.3.2.2 Modèle de Boson indépendant . . . . .	64
3.3.2.3 Ailes de phonons et polaron acoustique . . . . .	66
3.3.2.4 Couplage quadratique aux phonons acoustiques . . . . .	68
3.3.2.5 Élargissement inhomogène de la ZPL . . . . .	71
3.3.2.6 Déphasage induit par les phonons pendant l'excitation . . . . .	73
3.3.3 Dynamique spectrale des phonons acoustiques : cavité phononique ? . . . . .	75
3.4 Conclusion . . . . .	78
<b>4 Dynamiques et couplages cohérents de complexes excitoniques</b>	<b>79</b>
4.1 Introduction . . . . .	80
4.2 Réponse cohérente d'un système exciton-biexciton . . . . .	80
4.2.1 Matrice densité d'un système exciton-biexciton . . . . .	80
4.2.2 Classification des battements quantiques . . . . .	83
4.2.3 Dynamiques des cohérences en fonction de la polarisation . . . . .	86
4.2.4 Dynamiques des populations en fonction de la polarisation . . . . .	89
4.3 Spectroscopie 2D-FWM d'une BQ à fluctuation de charge . . . . .	91
4.3.1 Interprétation des états chargés . . . . .	91
4.3.2 Couplages cohérents via 2D-FWM . . . . .	93
4.3.3 Dépendance du couplage en fonction de la puissance d'excitation . . . . .	95
4.4 Conclusion . . . . .	96
<b>5 Fenêtrage temporel du signal de mélange à quatre ondes d'une boîte quantique unique</b>	<b>97</b>
5.1 Introduction . . . . .	98
5.2 Protocole de conversion FWM/SWM . . . . .	98
5.2.1 Modèle analytique . . . . .	98
5.2.2 Interprétation physique . . . . .	101
5.3 Choix de l'émetteur . . . . .	101
5.3.1 Identification et caractérisation d'un système à deux niveaux . . . . .	101
5.4 Conversion FWM/SWM . . . . .	103
5.4.1 Fenêtrage temporel du signal FWM . . . . .	103
5.4.2 Façonnage spectral du signal FWM . . . . .	104
5.5 Conclusion et perspectives . . . . .	109
<b>Conclusion</b>	<b>111</b>
<b>Perspectives : Les trompettes photoniques</b>	<b>113</b>
<b>Liste de publications et conférences</b>	<b>117</b>

---

<i>Annexe : Harvesting, coupling and control of single exciton coherences enabled by photonic trumpets</i>	119
Liste des symboles et abréviations	129
Bibliographie	135





# Table des figures

1	Les sept étapes pour réaliser un ordinateur quantique tolérant aux fautes. . .	3
1.1	Images MEB de BQs auto-assemblées InAs/GaAs. . . . .	6
1.2	Schéma d'une BQ InAs/GaAs et de ses niveaux d'énergie. . . . .	7
1.3	Schéma d'une excitation non-résonante et résonante d'un exciton dans une BQ. . . . .	8
1.4	Représentation schématique des différents états excitoniques du niveau fondamental. . . . .	9
1.5	Excitation quasi-résonante d'un $2\mathcal{LS}$ . . . . .	9
1.6	Relaxation d'un $2\mathcal{LS}$ . . . . .	12
1.7	Représentation schématique des solutions des EBO pour deux impulsions. . .	15
1.8	Représentation schématique des solutions des EBO pour trois impulsions. . .	16
1.9	Représentation du vecteur de Bloch pour un état pur. . . . .	18
1.10	Précession du vecteur de Bloch sans relaxation et sans champ extérieur. . .	19
2.1	Interférences des deux faisceaux de vecteurs d'ondes $\vec{k}_1$ et $\vec{k}_2$ sur l'échantillon. .	23
2.2	Principe d'une expérience d'écho de photon. . . . .	23
2.3	Détection hétérodyne optique. . . . .	24
2.4	Schéma général du dispositif expérimental. . . . .	26
2.5	Dispersion d'une impulsion à travers un milieu dispersif. . . . .	28
2.6	Schéma du façonneur d'impulsion. . . . .	29
2.7	Évolution de la position nulle $L_0$ et de la distance focale $f_1$ en fonction de la longueur d'onde $\lambda$ . . . . .	29
2.8	Schéma des rayons optiques au niveau du réseau de diffraction pour une dispersion normale ( $L < L_0$ ) et anormale ( $L > L_0$ ). . . . .	30
2.9	Schéma de l'autocorrélateur d'intensité. . . . .	31
2.10	Mesure d'autocorrélation en intensité. . . . .	32
2.11	Schéma d'un objectif de microscope pour trois ouvertures numériques. . . .	33
2.12	Dispositif d'imagerie confocale. . . . .	33
2.13	Schéma de la diffraction de Bragg dans un AOM. . . . .	35
2.14	Modulation de la phase relative d'un train d'impulsion. . . . .	35
2.15	Mélange des faisceaux dans l'AOM de démodulation synchronisé sur la fréquence de détection hétérodyne. . . . .	36
2.16	Spectres de la fréquence hétérodyne $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$ . . . . .	37
2.17	Synchronisation du décalage de phase avec le temps de lecture de la caméra. .	39
2.18	Interférences spectrales entre la référence et $\mathcal{E}_1$ sur la fréquence hétérodyne $\Omega_D = \Omega_1$ . . . . .	40
2.19	Étapes de la routine d'acquisition. . . . .	41
2.20	Exemple de signal d'interférence d'une transition excitonique. . . . .	42

2.21	Exemple de spectre FWM mesuré par interférométrie spectrale hétérodyne de BQs InAs/GaAs dans une microcavité planaire. . . . .	43
2.22	Réponse temporelle du spectromètre pour le réseau 1800 traits/mm à 902 nm. . . . .	44
2.23	Collection de la lumière d'une BQ avec et sans cavité. . . . .	45
2.24	Images MEB de la microcavité. . . . .	47
2.25	Simulations numériques de l'indice optique, du champ intra-cavité et de la réflectivité de la MC. . . . .	48
2.26	Caractérisation de l'échantillon en $\mu$ PL à $T = 5$ K. . . . .	48
2.27	Images AFM de la surface de l'échantillon. . . . .	50
2.28	Simulations numériques des défauts photoniques. . . . .	50
3.1	Séquence d'impulsion et évolution du vecteur de Bloch lors d'une mesure d'oscillation de Rabi. . . . .	53
3.2	Signal FWM d'excitons confinés dans des BQs InAs/GaAs à $T = 4$ K. . . . .	54
3.3	Oscillations de Rabi de GX en fonction de la puissance de la pompe. . . . .	54
3.4	Oscillations de Rabi d'un exciton en fonction de la puissance de la sonde. . . . .	55
3.5	Signal FWM et pompe-sonde d'un exciton unique. . . . .	56
3.6	Déphasage radiatif d'un exciton unique confiné dans une BQ InAs à $T = 4$ K. . . . .	58
3.7	Représentation schématique d'une BQ en présence de fluctuation d'environnement. . . . .	60
3.8	Représentation schématique de l'écho de photon en fonction du temps pour trois délais $\tau_{12}$ . . . . .	60
3.9	Dynamique de population et de cohérence d'un exciton unique à $T = 4$ K en présence de diffusion spectrale. . . . .	61
3.10	Suivi du déplacement temporel de l'écho. . . . .	62
3.11	Représentation schématique d'un polaron optique et d'un polaron acoustique. . . . .	64
3.12	Courbes de dispersion des phonons optiques et acoustiques dans GaAs. . . . .	65
3.13	Représentation schématique des potentiels d'énergie du niveau fondamental et excité couplés aux phonons acoustiques. . . . .	66
3.14	Déphasage d'un exciton unique induit par les phonons acoustiques : ailes de phonons et déclin initial non-exponentiel de la polarisation. . . . .	68
3.15	Transition virtuelle assistée par l'absorption et l'émission d'un phonon acoustique. . . . .	69
3.16	Élargissement de la ZPL via le couplage quadratique aux phonons acoustiques. . . . .	70
3.17	Évolution de la largeur homogène $\gamma_2$ en fonction de la température. . . . .	71
3.18	Évolution de la largeur inhomogène $\sigma$ en fonction de la température. . . . .	72
3.19	Amortissement des oscillations de Rabi d'un exciton unique. . . . .	73
3.20	Représentation schématique du couplage fort laser-exciton-phonon . . . . .	74
3.21	Représentation schématique de l'évolution adiabatique de l'énergie des branches de polaritons au passage de l'impulsion. . . . .	75
3.22	Oscillations des ailes de phonons acoustiques. . . . .	77
4.1	Schéma d'un système exciton-biexciton dans une BQ pour une excitation polarisée circulairement et linéairement. . . . .	81
4.2	Identification d'un système exciton-biexciton. . . . .	84
4.3	Battements quantiques d'un système exciton-biexciton. . . . .	85
4.4	Dynamique des cohérences pour une excitation colinéaire. . . . .	87
4.5	Dynamiques des cohérences pour une excitation linéaire croisée. . . . .	88
4.6	Dynamiques des populations d'un système exciton-biexciton. . . . .	90
4.7	Signal FWM d'une BQ à fluctuation de charge. . . . .	92

---

4.8	Représentation schématique d'un trion négatif $X^-$ , d'un biexciton négatif $B^-$ et de l'état excité du trion négatif excité $X_{S,T}^{-*}$ . . . . .	93
4.9	Carte 2D-FWM d'une BQ à fluctuation de charge. . . . .	94
4.10	Couplage cohérent en fonction de l'aire d'impulsion. . . . .	95
5.1	Schéma d'un réseau quantique optique composé de deux <i>qubits</i> . . . . .	98
5.2	Évolution temporelle des polarisation FWM et SWM. . . . .	100
5.3	Identification et caractérisation d'un trion unique pour l'expérience de contrôle cohérent. . . . .	102
5.4	Fenêtrage temporel du signal FWM en fonction du délai $\tau_{23}$ . . . . .	103
5.5	Façonnage spectral du signal FWM en fonction du délai $\tau_{23}$ . . . . .	105
5.6	Façonnage spectral du signal FWM en fonction du délai $\tau_{23}$ . . . . .	106
5.7	Façonnage spectral du signal FWM en fonction de l'aire d'impulsion $\Theta_3$ . . . . .	107
5.8	Façonnage spectral de la polarisation totale. . . . .	108
5.9	Interférences des polarisations FWM de trois transitions excitoniques. . . . .	109
5.10	Couplage radiatif entre deux BQs séparées spatialement dans un guide d'onde photonique. . . . .	110
5.11	Réponse FWM d'une BQ InAs confinée dans une trompette photonique. . . . .	115

# Introduction

« *If quantum mechanics hasn't profoundly shocked you,  
you haven't understood it yet.* »

Niels Bohr

« *I think I can safely say that nobody understands quantum mechanics.* »

Richard Feynman

## Bref historique

L'évolution des technologies est au cœur de la société actuelle. La recherche fondamentale a montré de part le passé qu'elle contribue activement au changement technologique. En 1905, Albert Einstein publie quatre articles qui contribueront de manière significative à établir les fondements de la physique moderne. Le premier article de cette *année miraculeuse* propose une explication de l'effet photoélectrique basée sur l'utilisation du quantum d'énergie introduit par Max Planck en 1900 pour expliquer le "rayonnement du corps noir", définit par l'énergie  $\epsilon = h\nu$  où  $h$  est la constante de Planck et  $\nu$  est la fréquence de la lumière. C'est la naissance du *photon*. Einstein vient de *quantifier* la lumière jusqu'alors considérée comme ondulatoire par les équations de Maxwell. Bien que totalement visionnaire pour l'époque, cette découverte majeure mettra plusieurs années avant d'être admise par la communauté scientifique. En 1913, Niels Bohr apportera une seconde pierre à l'édifice en proposant un modèle quantifié de l'atome de Rutherford, en se basant également sur le quantum d'énergie de Planck. Un an plus tard, l'expérience de Franck et Hertz viendra confirmer les prédictions de Bohr. La *révolution quantique* est en marche et plus rien ne l'arrêtera.

Depuis plus d'un siècle, des expériences scientifiques menées à travers le monde n'ont fait que confirmer les lois de la mécanique quantique, à tel point qu'aucune expérience, à l'heure actuelle, n'a pu contredire une seule de ces prédictions. Force est de constater que cette théorie, excentrique et visionnaire, décrit parfaitement le monde de "l'infiniment petit" auquel l'être humain n'est en aucun point familier. Aujourd'hui, l'impact technologique de la révolution quantique est considérable. Citons par exemple la découverte de l'émission stimulée par Einstein en 1917 qui donnera naissance au premier "M.A.S.E.R" (Microwave Amplification by Stimulated Emission) en 1953, puis au fameux "L.A.S.E.R" (Light Amplification by Stimulated Emission) en 1960. Aujourd'hui, les lasers font partie intégrante de notre vie. L'évolution technologique dans ce domaine continue de repousser les limites de la physique, en proposant des lasers de plus en plus rapides, atteignant à l'heure actuelle des largeurs d'impulsions proche du cycle optique, de l'ordre de 150 attosecondes (1 attoseconde =  $10^{-15}$  secondes) pour les lasers XUV (extrême ultraviolet). D'autre part, la technologie des semiconducteurs vers l'infiniment petit n'a cessé de progresser. Le transistor en est le parfait exemple. Inventé en 1947 par des chercheurs des laboratoires

Bell, il est rapidement devenu le composant de base de l'électronique moderne, si bien qu'en 1971, la société Intel intégrera 2300 transistors dans ce qui sera considéré comme le premier microprocesseur de l'histoire. Dès lors, boosté par le marché grandissant de l'informatique, le nombre de transistors par microprocesseur va littéralement exploser, jusqu'à suivre une croissance exponentielle, connue sous le nom de *loi de Moore*. Initialement de la taille d'une grosse ampoule, la taille du transistor actuel ne fait plus que quelques nanomètres (1 nanomètre =  $10^{-9}$  mètre), afin de permettre aux industriels d'intégrer plusieurs milliards de transistors par microprocesseurs et de concevoir des ordinateurs toujours plus puissants. Mais cette course à l'infiniment petit atteint progressivement ses limites, et se heurte désormais à un problème de "taille" : celle de l'atome ! En 2012, le premier transistor atomique voit le jour [1], dont l'industrialisation est prévue à l'horizon 2020 par la célèbre loi de Moore. A cette échelle, les effets quantiques perturberont le bon fonctionnement des composants électroniques. On assiste donc à un changement de paradigme, engrainé par des enjeux économiques planétaires qui poussent l'industrie à ouvrir la porte du monde quantique, c'est la naissance de *l'informatique quantique*.

## L'émergence de l'informatique quantique

En informatique *classique*, un *bit* d'information représente la mémoire élémentaire d'un ordinateur classique. Un tel bit stocke son information dans deux états, 0 ou 1. L'informatique actuelle est basée sur la manipulation de *c-registres* formés d'un très grand nombre de bits (0, 1, 1, 0, 1, 0, ...), et connectés par des opérations logiques simples et séquentielles. Le nombre d'opérations dépend donc du nombre de bits disponibles, autrement dit du nombre de transistors. A l'heure actuelle, la vitesse d'un ordinateur est limitée technologiquement par la taille des transistors, pour intégrer le maximum de bits sur un processeur classique.

En informatique *quantique*, l'information est stockée dans un bit quantique d'information, appelé *qubit*<sup>1</sup>. Contrairement à la mécanique classique, les règles de la mécanique quantique autorisent un système quantique à se retrouver dans une *superposition* cohérente d'états quantiques. Autrement dit, un qubit a une probabilité non nulle d'être au même moment dans l'état 0 et dans l'état 1. La fonction d'onde  $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$  décrit l'état du qubit à un instant donné, où  $\alpha$  et  $\beta$  représentent les amplitudes de probabilité de trouver le qubit dans les états  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . Le nombre de possibilités est encore plus grand lorsque l'on considère les *q-registres* formés de  $n$  qubits. Les opérations quantiques sont alors basées sur des combinaisons linéaires de type  $|\Psi\rangle = \sum \alpha_i|0, 1, 1, 0, 1, 0, \dots\rangle$ , où la somme s'étend sur tous les nombres binaires (011010...) variant entre 0 et  $2^n$ . Ainsi, au lieu de réaliser des opérations successives de manière classique, les opérations quantiques logiques sont réalisées sur des états quantiques du type  $|\Psi\rangle$ , qui contiennent toutes les valeurs possibles des c-registres à la fois. Cela représente un grand intérêt dans les problèmes de "choix", où il faut effectuer un grand nombre d'essais au hasard pour trouver la solution, comme par exemple lors de la factorisation d'un très grand nombre.

Cependant, la réalisation pratique d'un grand nombre de qubits se heurte à un problème majeur : la *décohérence*. Celle-ci entraîne le brouillage des q-registres vers des superpositions statistiques de c-registres. Or, plus le nombre de qubits augmente, plus la décohérence est importante. A l'heure actuelle, aucun système physique n'a encore résolu ce problème. Pour plus d'informations sur le sujet, le lecteur pourra se référer aux ouvrages suivant [2, 3].

---

1. Contraction anglophone de *quantum bit*, le *qubit* est l'état quantique qui représente la plus petite unité de stockage d'information quantique, c'est l'analogie quantique du bit.

## L'importance de la décohérence

Le temps de décohérence caractérise les dynamiques d'un système quantique, tel qu'un qubit, en contact avec son environnement. D'un point de vue simplifié, ce temps correspond au temps caractéristique que met un état purement quantique  $|\psi\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$  pour se transformer en une mixture  $\rho = |\alpha|^2|0\rangle\langle 0| + |\beta|^2|1\rangle\langle 1|$ . La décohérence est le principal mécanisme de l'émergence d'un comportement classique lors d'une opération quantique. Une particule quantique peut avoir plusieurs temps de décohérence plus ou moins longs selon le degré de liberté considéré. Comme par exemple les états vibrationnels d'un atome, le spin d'un électron ou la polarisation d'un photon. Ces temps de décohérence sont à comparer au temps pour réaliser une opération quantique sur le qubit, comme la rotation du spin de l'électron par exemple. Plus le temps de décohérence est grand devant celui de l'opération, plus le qubit est efficace pour réaliser des calculs quantiques. Cependant, l'augmentation du nombre de qubits diminue systématiquement le temps de décohérence de chaque qubit, et limite le nombre d'opérations quantiques réalisables. La solution à ce problème réside dans l'utilisation de codes de correction d'erreur de systèmes quantiques [4, 5]. Pour que ces codes correcteurs fonctionnent avec succès, le temps de décohérence du qubit doit être quatre à cinq ordres de grandeurs plus long que l'opération quantique. Cette condition très restrictive élimine en réalité un grand nombre de candidats dans la course à l'ordinateur quantique. Pour l'instant, seuls quelques systèmes quantiques ont passé cette difficulté pour atteindre la quatrième des sept étapes nécessaires pour réaliser un ordinateur quantique tolérant aux fautes (cf figure 1). Les premiers à avoir franchi cette étape sont les atomes froids avec les ions piégés [6] et les atomes de Rydberg [7]. Dans les solides, où l'interaction avec l'environnement est omniprésente, seuls les circuits supraconducteurs ont atteint ce niveau de complexité [8]. D'un point de vue applicatif, les systèmes solides sont facilement intégrables dans des circuits imprimés et réalisables à grande échelle. Ils représentent de sérieux candidats dans la course à l'ordinateur quantique, même si les temps de décohérences dans les solides sont plus faibles que ceux des atomes froids. Bien que tous ces systèmes soient aujourd'hui très avancés, la route vers la conception d'un ordinateur quantique est encore très longue.

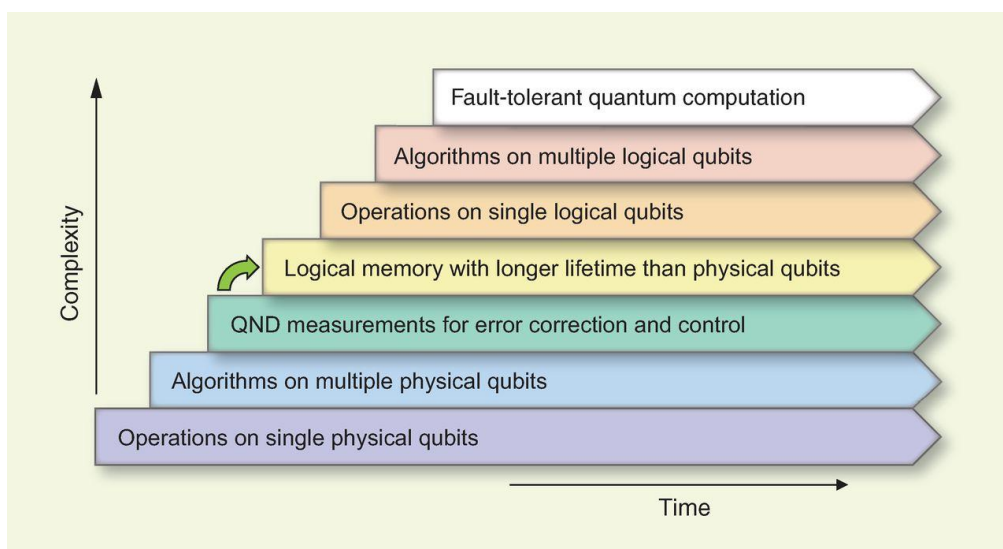


FIGURE 1 – Les sept étapes à valider pour réaliser un ordinateur quantique tolérant aux fautes. La flèche verte représente le niveau de complexité atteint par les meilleurs qubits à l'heure actuelle (M. H. Devoret, R. J. Schoelkopf [9]).

## Objectifs de la thèse

L'objectif de ma thèse est d'étudier la cohérence optique dans les solides. Plus particulièrement, je me suis intéressé aux boîtes quantiques (BQs) semiconductrices. Ces nano-objets permettent de confiner le déplacement des électrons dans un espace réduit de quelques nanomètres, jusqu'à quantifier leurs positions pour créer des niveaux d'énergie discrets. Par analogie aux niveaux d'énergie d'un atome, les BQs sont souvent comparées à des "atomes artificiels". Elles présentent l'intérêt d'être optiquement actives et d'émettre des photons à des fréquences allant de l'ultra-violet à l'infrarouge, rendant possible les mesures de spectroscopie optique. Durant ma thèse, j'ai développé une technique de spectroscopie non-linéaire ultra-rapide pour étudier les propriétés optiques des BQs, et plus particulièrement pour comprendre les mécanismes de décohérence et de couplage cohérent à l'échelle d'une BQ unique. Cette technique est basée sur l'utilisation de lasers ultra-courts, permettant d'accéder à des dynamiques temporelles sub-picoseconde (1 picoseconde =  $10^{-12}$  seconde), en mesurant la polarisation non-linéaire du matériau. Pour réaliser ces expériences, j'ai eu recours à différents types de nanostructures photoniques (microcavités optiques, fils photoniques) pour augmenter l'interaction des BQs avec la lumière. Dans un souci de clarté, seuls les résultats obtenus avec les microcavités optiques sont décrits dans ce manuscrit. Les résultats obtenus avec les fils photoniques sont présentés en annexe 5.5. Les différents chapitres du manuscrit sont organisés de la manière suivante.

Le chapitre 1 introduit les notions de base d'optique quantique nécessaires à la bonne compréhension des phénomènes physiques décrits dans ce manuscrit. Une partie théorique explique l'origine du signal de *mélange à quatre ondes* (FWM) d'un système à deux niveaux lors d'une excitation à deux, puis trois impulsions.

Le chapitre 2 apporte au lecteur les détails sur le dispositif expérimental de mélange à quatre ondes hétérodyne développé au cours de ma première année de thèse, ainsi qu'un descriptif détaillé des microcavités optiques utilisées pour réaliser les résultats expérimentaux présentés dans les chapitres 3, 4 et 5.

Le chapitre 3 s'intéresse aux mécanismes de déphasage qui détruisent la cohérence optique des BQs individuelles. Des études en température permettront de comprendre le rôle de l'environnement solide dans la décohérence de ces émetteurs.

Le chapitre 4 présente des mesures de spectroscopie bidimensionnelle pour comprendre les mécanismes de couplage cohérent entre excitons<sup>2</sup>. Il présente également une étude sur les états chargés d'une BQ à fluctuation de charge.

Enfin, le chapitre 5, en marge de tous les autres chapitres, propose un nouveau protocole de contrôle cohérent de la réponse non-linéaire d'un émetteur quantique individuel. Il démontre la possibilité d'interrompre temporellement la polarisation FWM d'un exciton en utilisant un laser de contrôle pour la convertir vers la polarisation de *mélange à six ondes* (SWM).

Certaines abréviations utilisées dans ce manuscrit proviennent de mots d'origines anglaises. Leurs significations sont référencées à la fin du document dans la liste des symboles et abréviations.

---

2. Un exciton est une quasi-particule formée d'une paire électron-trou liée par l'interaction Coulombienne.



# Chapitre 1

## Interaction lumière-matière d'un émetteur quantique

### Sommaire

---

<b>1.1 Propriétés des boîtes quantiques semiconductrices</b> . . . . .	<b>6</b>
1.1.1 Réduction de dimensionnalité . . . . .	6
1.1.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques . . . . .	7
<b>1.2 Cadre théorique</b> . . . . .	<b>9</b>
1.2.1 Équations de Bloch optiques d'un système à deux niveaux . . . . .	9
1.2.2 Cohérences et populations . . . . .	11
1.2.3 Développement perturbatif de la matrice densité . . . . .	12
1.2.4 Solution analytique pour deux impulsions : FWM dégénéré . . . . .	13
1.2.5 Solution analytique pour trois impulsions : FWM non-dégénéré . . . . .	15
<b>1.3 Vecteur de Bloch</b> . . . . .	<b>17</b>
1.3.1 Précession du vecteur de Bloch . . . . .	17
1.3.2 Solution sans relaxation : oscillations de Rabi . . . . .	18
1.3.3 Solution sans champ électrique : évolution libre . . . . .	19

---

Ce chapitre donne au lecteur les concepts de base en optique quantique et en optique non-linéaire, essentiels à la compréhension des phénomènes physiques abordés dans ce manuscrit. Nous commencerons par décrire le système quantique étudié, puis nous utiliserons une approche *semi-classique* pour expliquer de manière théorique l'origine du *mélange à quatre ondes* d'un émetteur quantique individuel tel qu'un exciton confiné dans une boîte quantique semiconductrice. Les notions de base sur la physique des semiconducteurs ne sont volontairement pas abordées. Pour plus de détails, le lecteur pourra se référer aux ouvrages suivants [10, 11, 12].

## 1.1 Propriétés des boîtes quantiques semiconductrices

### 1.1.1 Réduction de dimensionnalité

Les boîtes quantiques (BQs) semiconductrices optiquement actives sont des nanostructures permettant de confiner le déplacement des porteurs de charges (électrons et trous) dans les trois dimensions de l'espace. Du fait du confinement spatial, les niveaux d'énergies des porteurs de charges sont quantifiés. La discrétisation des niveaux d'énergies se manifeste quand les dimensions de la BQ deviennent comparables à la longueur d'onde de De Broglie des porteurs charges  $\lambda_{DB} \approx h/\sqrt{2m^*k_B T}$ , où  $h$  et  $k_B$  sont les constantes de Planck et de Boltzmann,  $T$  est la température absolue et  $m^*$  est la masse effective des électrons/trous dans le cristal semiconducteur. Puisque  $m^*$  est généralement beaucoup plus petit que la masse de l'électron libre,  $\lambda_{DB}$  est de l'ordre de 10-100 nm à basse température. Pour de telles tailles, l'espacement entre les niveaux d'énergie est plus grand que l'énergie thermique. Par ailleurs, lorsque  $k_B T$  est plus petit que l'énergie de liaison électron-trou résultant de l'attraction Coulombienne, les électrons et les trous sont liés pour former des *excitons*, lesquels peuvent se désintégrer radiativement en émettant des photons d'énergies quantifiées, de la même manière que les transitions atomiques. À ce titre, les BQs sont souvent comparées à des "atomes artificiels". L'extension spatiale d'un exciton dans un matériau diélectrique est donnée par son rayon de Bohr  $a_0 = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r \hbar^2}{\pi \mu^* e^2}$ , où  $\epsilon_0$  et  $\epsilon_r$  sont les permittivités diélectriques du vide et du matériau,  $\mu^*$  est la masse réduite de l'exciton et  $e$  est la charge de l'électron. En raison des faibles valeurs de  $\mu^*$  par rapport à la masse de l'électron libre et des grandes valeurs de  $\epsilon_r$  pour les semiconducteurs typiques, le rayon de Bohr d'un exciton est considérablement plus grand que celui de l'atome d'hydrogène. Plutôt que de considérer  $\lambda_{DB}$  pour les électrons et les trous séparément, il est habituellement plus commode de décrire une BQ comme une région de l'espace dont la taille est comparable au rayon de Bohr de l'exciton.

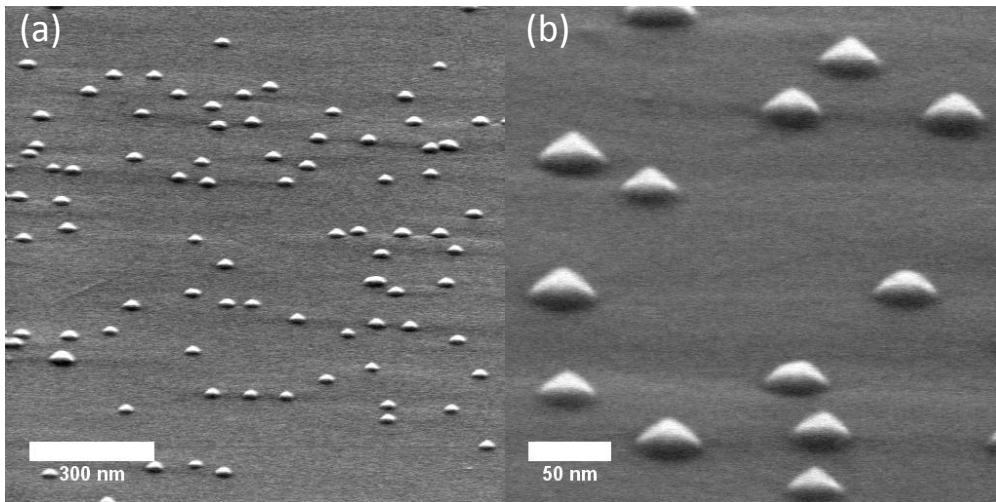


FIGURE 1.1 – (a) et (b) Images MEB de BQs auto-assemblées InAs/GaAs avant l'encapsulation (Université de Würzburg).

Les BQs optiquement actives sont généralement composées de matériaux semiconducteurs à gap direct, pour que les transitions optiques soient directes, i.e. sans processus de relaxation, à la fois dans l'espace réel et réciproque. Différents types de BQs semiconductrices existent suivant la technique de fabrication utilisée. Citons par exemple les BQs à

fluctuations d'interfaces [13], les nanocristaux colloïdaux [14], et les BQs épitaxiées par jet moléculaire [15] (MBE), par dépôt chimique en phase vapeur [16] (MOCVD), ou par gouttelette [17]. Les échantillons étudiés dans ce manuscrit sont des BQs auto-assemblées obtenues grâce à la transition Stranski-Krastanov [18] (SK) de semiconducteurs III-V, en faisant croître un alliage d'indium et d'arsenic (InAs) sur un alliage de gallium et d'arsenic (GaAs) via la technique de MBE. La différence entre les paramètres de maille de ces deux matériaux semiconducteurs, d'environ 7 %, induit un champ de contrainte durant la croissance. Quand l'épaisseur moyenne d'InAs dépasse 1.7 monocouche, le champ de contrainte se relaxe sous forme d'îlots tridimensionnels. Les îlots d'InAs obtenus correspondent aux BQs auto-assemblées, tandis que la fine couche sur laquelle ils reposent est appelée la couche de mouillage (WL). La figure 1.1 montre des images de microscope électronique à balayage (MEB) des BQs InAs/GaAs étudiées, avant la déposition de GaAs venant encapsuler les BQs. L'énergie du gap du semiconducteur InAs étant plus petite que celui de GaAs, les porteurs de charges se retrouvent piégés dans un puits de potentiel énergétique et occupent des niveaux d'énergie discrets, illustrés schématiquement sur la figure 1.2 (b). Pour une BQ InAs/GaAs, l'énergie du premier état excitonique correspond à un électron sur la couche  $S$  de la bande de conduction et un trou sur la couche  $S$  de la bande de valence et vaut environ 1.36 eV. La recombinaison radiative d'un exciton entraîne l'émission d'un photon dans le proche infrarouge ( $\approx 910$  nm).

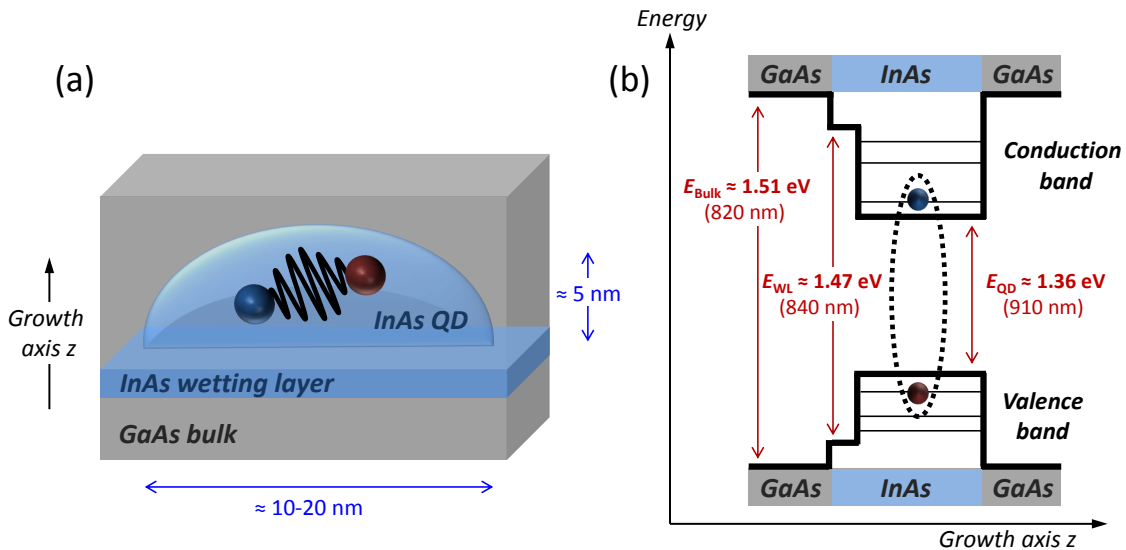


FIGURE 1.2 – (a) Schéma d'une BQ InAs/GaAs et (b) de ses niveaux d'énergie.

### 1.1.2 Propriétés optiques des boîtes quantiques

Toutes les expériences réalisées durant ma thèse ont impliqué des excitations optiques. On distingue deux types d'excitation : non-résonante et résonante. Lors d'une excitation non-résonante ou expérience de *photoluminescence* (PL), illustrée schématiquement sur la figure 1.3 (a), les électrons de la bande de valence sont excités vers la bande de conduction de la barrière de potentiel (GaAs) par un laser non-résonant, dont l'énergie des photons est supérieure à l'énergie de gap. Cela entraîne un excédent d'électrons et de trous dans la bande de conduction et de valence respectivement. Les charges excédentaires sont alors capturées par la BQ, et rapidement relaxées vers les niveaux de plus basses énergies, en échangeant leur surplus d'énergie avec les phonons du réseau (émission/diffusion), ou par

recombinaison Auger avec des électrons de la matrice environnante. Toutes les expériences décrites dans ce manuscrit ont été réalisées à basses températures ( $< 50$  K), par conséquent, l'évasion thermique des charges de la BQ par absorption de phonons n'est pas possible. Les électrons et les trous finissent par relaxer leurs énergies jusqu'au niveau fondamental de la BQ, et n'ont plus d'autres choix que de se recombiner radiativement en émettant des photons d'énergie quantifiés, après un temps caractéristique correspondant au *temps de vie* de l'exciton. Ce temps caractéristique vaut environ une nanoseconde pour les BQs InAs/GaAs [19]. A cause des nombreux processus de diffusion, les charges perdent rapidement toute leur *cohérence* durant une expérience de PL. Il est toutefois possible de créer directement une paire électron-trou en utilisant un laser résonant pour exciter la transition fondamentale de la BQ (cf figure 1.3 (b)). Ce schéma d'excitation permet de supprimer tous les processus de relaxation des charges, et de ne s'intéresser qu'au déclin radiatif de l'exciton.

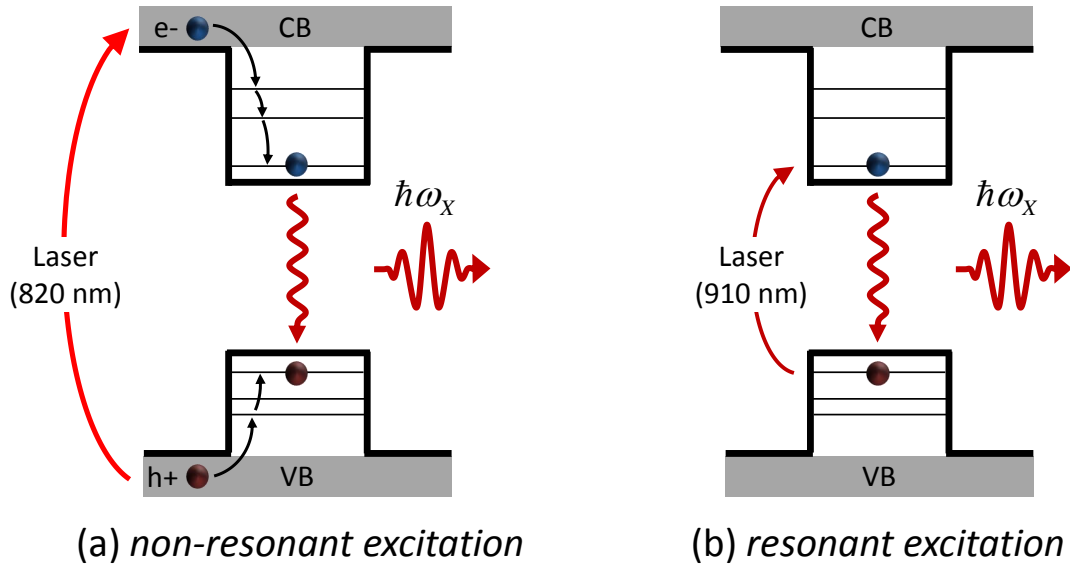


FIGURE 1.3 – Schéma d'une excitation (a) non-résonante et (b) résonante d'un exciton dans une BQ.

Selon le principe de Pauli, il est possible de piéger jusqu'à deux paires électrons-trous dans le niveau fondamental d'une BQ. La figure 1.4 représente les différents états excitoniques de l'état fondamental. On distingue deux catégories d'états excitoniques : les états neutres et les états chargés. Le premier état neutre accessible correspond au piégeage d'un électron et d'un trou, dont l'énergie de recombinaison  $\hbar\omega_X$  correspond à l'énergie de la paire électron-trou liée par l'interaction Coulombienne, appelé l'exciton neutre. Le piégeage de deux électrons et trous de spins opposés représente le deuxième état neutre accessible, appelé le *biexciton* neutre. La recombinaison de l'un des excitons engendre l'émission d'un photon d'énergie  $\hbar\omega_{XX} \neq \hbar\omega_X$  en raison de l'interaction Coulombienne entre les deux excitons. Cette énergie de liaison varie d'une BQ à une autre en fonction du degré de confinement des charges et peut aller de quelques meV jusqu'à plusieurs dizaines de meV [20].

Dans certains cas, la BQ peut se charger positivement ou négativement selon le dopage de l'échantillon. La création d'un exciton engendre alors un état excitonique chargé appelé le *trion*. De la même manière que pour le biexciton, l'interaction Coulombienne entre les charges engendre un décalage positif ou négatif de l'énergie du trion par rapport à celle de l'exciton neutre [21].

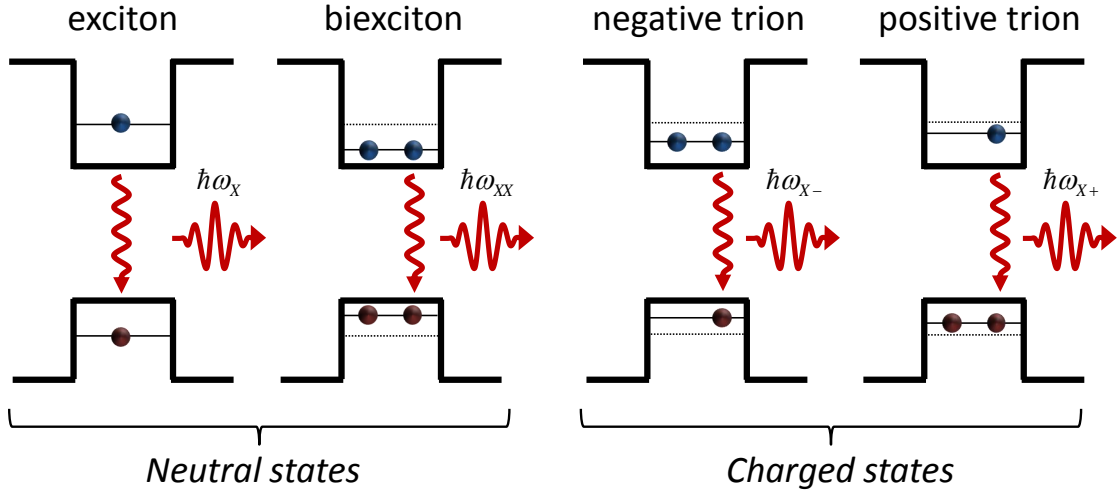


FIGURE 1.4 – Représentation schématique des différents états excitoniques du niveau fondamental.

## 1.2 Cadre théorique

Cette partie apporte les outils théoriques nécessaires à la compréhension du manuscrit. Nous introduirons le formalisme de la matrice densité permettant de calculer les équations de Bloch optiques (EBO) régissant l'évolution d'un système quantique simple, tel qu'un système à deux niveaux ( $2\mathcal{LS}$ ), en interaction avec un champ électrique, puis une série d'impulsions optiques brèves. Nous définirons les notions de *populations* et de *cohérences* au cœur de tous les phénomènes physiques étudiés dans cette thèse. Enfin, nous introduirons la représentation géométrique du vecteur de Bloch permettant de décrire de manière simple et visuelle l'évolution des populations et des cohérences sur la sphère de Bloch. Nous utiliserons cette représentation géométrique tout au long du manuscrit.

### 1.2.1 Équations de Bloch optiques d'un système à deux niveaux

Un exciton confiné dans une BQ peut être simplement assimilé à un  $2\mathcal{LS}$ . Dans cette partie, nous nous intéressons à l'interaction entre un  $2\mathcal{LS}$  décrit de manière quantique et un champ électromagnétique décrit de manière classique. Cette approche dite *semi-classique*, permet de comprendre les notions de bases utilisées dans ce manuscrit, comme par exemple l'évolution temporelle des populations et cohérences d'un  $2\mathcal{LS}$ .

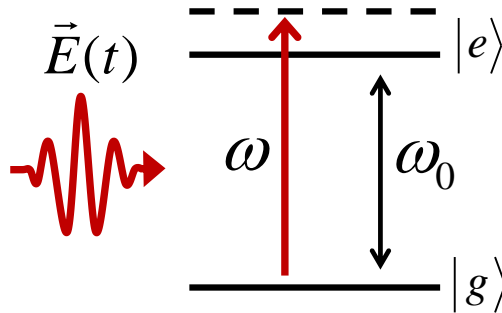


FIGURE 1.5 – Excitation quasi-résonante d'un  $2\mathcal{LS}$ .

Considérant l'interaction quasi-résonante d'un champ électrique  $E(t) = \mathcal{E}e^{i\omega t} + c.c.$  de fréquence  $\omega = \omega_0 + \Delta$  avec un  $2\mathcal{LS}$  (figure 1.5).  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$  représentent l'état fondamental et état excité du  $2\mathcal{LS}$ . Ils correspondent aux états propres de l'Hamiltonien non-perturbé  $\mathcal{H}_0$ , et ont pour valeurs propres  $\hbar\omega_g$  et  $\hbar\omega_e$  respectivement. La fonction d'onde du  $2\mathcal{LS}$  peut se décomposer sur la base de ses états propres telle que :

$$|\psi(t)\rangle = C_g(t)|g\rangle + C_e(t)|e\rangle \quad (1.1)$$

où  $|C_g|^2$  et  $|C_e|^2$  représentent les amplitudes de probabilité de trouver l'atome dans les états  $|g\rangle$  et  $|e\rangle$  respectivement. L'équation de Schrödinger décrit l'évolution temporelle de ce système telle que :

$$|\dot{\psi}(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar}\mathcal{H}|\psi(t)\rangle \quad (1.2)$$

avec :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I \quad (1.3)$$

où  $\mathcal{H}_0$  et  $\mathcal{H}_I$  représentent respectivement l'Hamiltonien non-perturbé et l'Hamiltonien d'interaction dans l'approximation dipolaire, tels que :

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_0|e\rangle\langle e| \quad (1.4a)$$

$$\mathcal{H}_I = (\mu_{ge}|g\rangle\langle e| + \mu_{eg}|e\rangle\langle g|) E(t) \quad (1.4b)$$

où  $\mu_{ge} = \mu_{eg}^* = \langle g|\mu|e\rangle$  est l'élément de matrice de l'opérateur dipolaire. Pour décrire l'évolution du  $2\mathcal{LS}$ , nous utilisons le formalisme de la *matrice densité* (ou opérateur densité)  $\rho$ , définit de la manière suivante :

$$\rho = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{pmatrix} |C_g|^2 & C_g C_e^* \\ C_e C_g^* & |C_e|^2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \rho_{gg} & \rho_{ge} \\ \rho_{eg} & \rho_{ee} \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

La matrice densité est hermitienne, ses éléments diagonaux  $\rho_{gg}$  et  $\rho_{ee}$  sont donc réels, ils correspondent respectivement aux *populations* de l'état fondamental  $|g\rangle$  et excité  $|e\rangle$ . La population totale du  $2\mathcal{LS}$  se conserve et vaut toujours 1, i.e.  $\text{Tr}(\rho) = \rho_{gg} + \rho_{ee} = 1$ . Les éléments non-diagonaux de la matrice densité correspondent aux *cohérences* entre les deux niveaux, tels que  $\rho_{eg} = \rho_{ge}^*$ . Les cohérences sont directement reliées à la polarisation du  $2\mathcal{LS}$  définie telle que :

$$\mathcal{P}(t) = \langle\mu(t)\rangle = \text{Tr}(\mu\rho) = \mu(\rho_{eg} + \rho_{ge}) \quad (1.6)$$

En utilisant ce formalisme, l'équation de Schrödinger se généralise sous la forme de l'*équation maîtresse* de Liouville-Von Neumann :

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar}[\mathcal{H}, \rho] - \rho_{relax} \quad (1.7)$$

où l'on a introduit de manière phénoménologique le terme de relaxation  $\rho_{relax} = -\Gamma_{nm}\rho_{nm}$  pour décrire l'interaction du  $2\mathcal{LS}$  avec son environnement, où  $\Gamma = \frac{4\omega_0\mu}{3\hbar c^3}$  est le taux d'émission spontanée du dipôle. Cette équation peut se généraliser sous la forme de Lindblad qui fait intervenir l'opérateur de dissipation  $\mathcal{L}(\rho)$  agissant sur  $\rho$  (voir chapitre 5). La résolution de l'équation 1.7, dans l'approximation de l'onde tournante, conduit alors aux *équations de Bloch optiques* (EBO) couplées [22] :

$$\dot{\tilde{\rho}}_{eg} = i\Omega_R(\rho_{ee} - \rho_{gg}) + \left(i\Delta - \frac{\Gamma}{2}\right)\tilde{\rho}_{eg} \quad (1.8a)$$

$$\dot{\tilde{\rho}}_{ee} = -\dot{\tilde{\rho}}_{gg} = i(\tilde{\rho}_{eg}\Omega_R^* - \Omega_R\tilde{\rho}_{ge}) - \Gamma\rho_{ee} \quad (1.8b)$$

où  $\tilde{\rho}_{eg} = \rho_{eg}e^{i\omega t}$ ,  $\Omega_R = -\mu E/\hbar$  représente la *fréquence de Rabi*,  $\Delta = \omega - \omega_0$  est le désaccord entre le laser et le  $2\mathcal{LS}$ . On remarque tout de suite que  $\dot{\rho}_{ee} + \dot{\rho}_{gg} = 0$ , ce qui montre que la population totale  $\rho_{ee} + \rho_{gg}$  est toujours conservée.

Les EBO décrivent de manière générale l'évolution d'un  $2\mathcal{LS}$  en interaction avec un champ électrique. On distingue deux dynamiques : la première représente l'action du champ électrique sur le  $2\mathcal{LS}$ . Elle se traduit par l'oscillation des populations et des cohérences à la fréquence de Rabi  $\Omega_R$ . Sans amortissement, et avec un champ constant au cours du temps, les *oscillations de Rabi* entre les deux niveaux du  $2\mathcal{LS}$  perdurent indéfiniment. La deuxième dynamique représente la relaxation du  $2\mathcal{LS}$ . Cette dynamique s'exprime en fonction des valeurs initiales des populations et des cohérences, et s'amortit au cours du temps sous forme d'émission spontanée. Dans le cas des semiconducteurs, les EBO peuvent se généraliser sous la forme *d'équations de Bloch des semiconducteurs* [12], dans lesquelles l'interaction Coulombienne entre les électrons et les trous est prise en compte. On se limitera ici aux EBO qui permettent d'expliquer tous les phénomènes physiques étudiés dans ce manuscrit.

### 1.2.2 Cohérences et populations

Considérons maintenant les EBO sans excitation laser ( $\Omega_R = 0$ ). L'évolution libre des populations décrit par l'équation 1.8b conduit à :

$$(\dot{\rho}_{ee} - \dot{\rho}_{gg}) + [(\rho_{ee} - \rho_{gg}) + 1]\Gamma = 0 \quad (1.9)$$

La résolution de l'équation 1.9 conduit à l'évolution temporelle des populations :

$$\rho_{ee}(t) - \rho_{gg}(t) = [(\rho_{ee}(0) - \rho_{gg}(0)) + 1]e^{-\frac{t}{T_1}} - 1 \quad (1.10)$$

On retrouve ainsi que l'inversion de population relaxe par émission spontanée la population de l'état excité vers l'état fondamental durant le temps  $T_1 = 1/\Gamma$  correspondant au temps de relaxation des populations ou *temps de vie* de l'exciton. De la même manière, la résolution de l'équation 1.8a qui décrit l'évolution libre des cohérences quand  $\Omega_R = 0$  conduit à :

$$\tilde{\rho}_{eg}(t) = \tilde{\rho}_{eg}(0)e^{-\left(\frac{1}{T_2} + i\omega_0\right)t} \quad (1.11)$$

où  $T_2 = 2/\Gamma$  correspond au temps de relaxation du dipôle ou *temps de cohérence* de l'exciton. Ce résultat s'interprète de manière physique en exprimant l'évolution temporelle du moment dipolaire :

$$\langle \mu(t) \rangle = \mu(\rho_{eg}(0)e^{-i\omega_0 t} + c.c.)e^{-\frac{t}{T_2}} \quad (1.12)$$

Ce résultat montre que le moment dipolaire oscille à la fréquence optique  $\omega_0$  et relaxe sa phase durant le temps de cohérence  $T_2$ . On remarque que la relaxation des populations est deux fois plus rapide que celle du dipôle. Dans le cas idéal, i.e. sans perturbation extérieure, la relaxation des populations et des cohérences est uniquement liée à l'émission spontanée du  $2\mathcal{LS}$  (cf figure 1.6). On dit alors que le  $2\mathcal{LS}$  est limité radiativement, tel que :

$$T_2 = 2T_1 \quad (1.13)$$

Dans un environnement solide, les perturbations sont nombreuses. Citons par exemple l'interaction avec les phonons du réseau ou les collisions élastiques et inélastiques avec d'autres électrons. Le déphasage du dipôle est alors beaucoup plus rapide que la relaxation

de la population, i.e.  $T_2 \ll 2T_1$ . En effet, il est beaucoup plus facile de brouiller une phase, aboutissant à la destruction de la cohérence, que de modifier une énergie, nécessaire pour détruire la population. Pour prendre en compte ces processus de déphasage, l'équation 1.13 s'écrit sous une forme plus générale :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (1.14)$$

où  $T_2^*$  représente le temps caractéristique de *déphasage pur*, englobant tous les processus de décohérence précédemment cités. Plus de détails sur le déphasage pur d'un exciton seront donnés dans le chapitre 3.

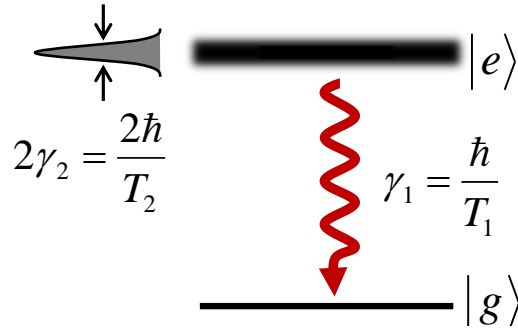


FIGURE 1.6 – **Relaxation d'un 2LS.**  $\gamma_1 = \hbar/T_1$  représente le taux de relaxation des populations et  $\gamma_2 = \hbar/T_2$  représente le taux de relaxation des cohérences, i.e. la demi-largeur de raie à mi-hauteur.

### 1.2.3 Développement perturbatif de la matrice densité

Nous allons maintenant nous intéresser à l'interaction d'un 2LS excité par une série d'impulsions optiques. Pour alléger les équations, nous utiliserons les notations suivantes  $n = \rho_{ee}$ ,  $1 - n = \rho_{gg}$  pour les populations et  $p = \rho_{eg}$ ,  $p^* = \rho_{ge}$  pour les cohérences. La matrice densité peut donc s'écrire :

$$\rho = \begin{pmatrix} 1 - n & p^* \\ p & n \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

En considérant une excitation résonante ( $\omega = \omega_0$ ), les EBO 1.8 peuvent s'écrire :

$$\dot{n} + \gamma_1 n + i(\Omega_R p^* - p \Omega_R^*) = 0 \quad (1.16a)$$

$$\dot{p} + \gamma p + i\Omega_R(1 - 2n) = 0 \quad (1.16b)$$

où  $\gamma_1 = \hbar/T_1$  est le taux de relaxation des populations et  $\gamma = \gamma_2 - i\omega_0$  avec  $\gamma_2 = \hbar/T_2$  est le taux de relaxation des cohérences. Les EBO couplées 1.16 ne peuvent être résolues analytiquement dans le cas général (à tous les ordres de perturbation). Cependant, dans la limite où l'amplitude du champ électrique est faible, il est possible d'effectuer un développement de Taylor de la matrice densité, afin d'obtenir une solution analytique de  $n$  et  $p$  à l'ordre désiré :

$$n = n^{(0)} + n^{(1)} + n^{(2)} + n^{(3)} + \dots \quad (1.17a)$$

$$p = p^{(0)} + p^{(1)} + p^{(2)} + p^{(3)} + \dots \quad (1.17b)$$



avec  $n^{(0)} = 0$  et  $p^{(0)} = 0$ . En utilisant les conditions initiales  $n(0) = 0$  et  $p(0) = 0$ , on peut montrer que les ordres impairs de  $n$  et pairs de  $p$  sont nuls. En utilisant ce raisonnement, nous pouvons écrire les EBO couplées jusqu'au troisième ordre :

$$\dot{p}^{(1)} + \gamma p^{(1)} + i\Omega_R = 0 \quad (1.18a)$$

$$\dot{n}^{(2)} + \gamma_1 n^{(2)} + i(\Omega_R p^{*(1)} - p^{(1)} \Omega_R^*) = 0 \quad (1.18b)$$

$$\dot{p}^{(3)} + \gamma p^{(3)} - 2i\Omega_R n^{(2)} = 0 \quad (1.18c)$$

Les ordres  $i+1$  de  $n(p)$  sont influencés par les ordres  $i$  de  $p(n)$ . En optique non-linéaire, il est usuel de développer la polarisation sous la forme :

$$\mathcal{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2 + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3 + \dots \quad (1.19)$$

où  $\chi^{(i)}$  représente la susceptibilité à l'ordre  $i$  des perturbations. Dans la suite du manuscrit, nous aborderons la notion de *mélange à quatre ondes* (FWM) pour faire référence à la polarisation de troisième ordre  $\mathcal{P}^{(3)}$ , et donc à des processus non-linéaires  $\chi^{(3)}$ . De la même manière, nous aborderons la notion de *mélange à six ondes* (SWM) pour faire référence à la polarisation de cinquième ordre  $\mathcal{P}^{(5)}$ , et donc à des processus non-linéaires  $\chi^{(5)}$ .

#### 1.2.4 Solution analytique pour deux impulsions : FWM dégénéré

La manière la plus simple de générer le signal FWM d'un  $2\mathcal{LS}$  tel qu'un exciton dans une BQ, est d'utiliser une seule impulsion optique de fréquence  $\omega$  et de vecteur d'onde  $k$ . Dans ce cas, la polarisation de troisième ordre correspondante s'écrit :

$$\mathcal{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^* E^2 = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}^3 e^{i(\omega t - i\vec{k} \cdot \vec{r})} + c.c. \quad (1.20)$$

Cependant, cette polarisation est émise sur la même fréquence et suivant le même vecteur d'onde que la polarisation de premier ordre. Il est donc impossible de mesurer uniquement  $p^{(3)}$  avec une seule impulsion. Le moyen le plus simple pour générer et détecter la polarisation de troisième ordre est de mesurer le signal FWM dégénéré (D-FWM) créé par deux impulsions optiques de fréquence  $\omega_i$  et de vecteur d'onde  $k_i$ . La polarisation de troisième ordre correspondante s'écrit :

$$\mathcal{P}^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E_1^* E_2^2 = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{i(2\omega_2 - \omega_1)t - i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}} + c.c. \quad (1.21)$$

Il est ainsi possible de détecter cette polarisation sur la fréquence  $2\omega_2 - \omega_1$  ou suivant le vecteur d'onde  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Dans le cas d'une source ponctuelle, l'émission est isotrope et la sélection en  $\vec{k}$  n'est pas possible. Détecter le signal FWM d'une BQ unique n'est possible qu'en sélectionnant la fréquence d'oscillation de la polarisation. Une détection hétérodyne optique permet de réaliser une telle sélection. Les impulsions optiques sont modulées sur des radio-fréquences  $\Omega_i \ll \omega_0$ , afin de détecter la polarisation  $p^{(3)}$  sur la fréquence hétérodyne optique  $\omega_0 + 2\Omega_2 - \Omega_1$ . Plus de détails concernant cette détection seront données dans le chapitre 2.

Les EBO peuvent être résolues pour n'importe quel profil temporel d'impulsion. La largeur temporelle des impulsions étant très petite devant le temps de relaxation de l'exciton, nous approximons les impulsions optiques à des fonctions Dirac, i.e.  $E_i(t) = \mathcal{E}_i \delta(t)$ . Nous considérons également que l'échantillon est mince et que les effets de propagation sont négligeables. La première impulsion, modulée à la fréquence  $\Omega_1$ , acquiert une phase

relative  $\phi_1$ , et excite la BQ au temps  $t = 0$ . La deuxième impulsion, modulée à la fréquence  $\Omega_2$ , acquiert une phase relative  $\phi_2$ , et excite la BQ au temps  $t = \tau$ . Le champ ressenti par la BQ est donc le suivant :

$$E(t) = \left[ \mathcal{E}_1 \delta(t) e^{i\phi_1} + \mathcal{E}_2 \delta(t - \tau) e^{i\phi_2} \right] e^{i\omega_0 t} + c.c. \quad (1.22)$$

La résolution de l'équation 1.18a donne la polarisation de premier ordre suivante :

$$p^{(1)} = \frac{-i\mu}{\hbar} \left[ \mathcal{E}_1 e^{-\gamma t + i\phi_1} H(t) + \mathcal{E}_2 e^{-\gamma(t-\tau) + i(\phi_2 + \omega_0 \tau)} H(t - \tau) \right] \quad (1.23)$$

où  $H$  représente l'échelon de Heaviside. La polarisation d'ordre un est donc une somme de deux termes oscillant à la fréquence  $\omega_0$ , de phase  $\phi_1$  et  $\phi_2$ , et s'amortissant exponentiellement avec le temps de déclin des cohérences  $T_2$ . La figure 1.7 (a) illustre schématiquement cet amortissement en fonction du temps (sans la partie oscillante). De la même manière, la population du second ordre est obtenue en résolvant l'équation 1.18b et en sélectionnant la combinaison de phase  $\phi_2 - \phi_1$  :

$$n_{21^*}^{(2)} = \left( \frac{\mu}{\hbar} \right)^2 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \left[ \begin{array}{l} e^{-\gamma_1(t-\tau) - \gamma^* \tau + i(\phi_2 - \phi_1 + \omega_0 \tau)} H(\tau) H(t - \tau) \\ + e^{-\gamma_1 t + \gamma \tau + i(\phi_2 - \phi_1 + \omega_0 \tau)} H(-\tau) H(t) \end{array} \right] \quad (1.24)$$

La population  $n_{21^*}^{(2)}$  est composée de deux termes. Le premier terme est non nul uniquement lorsque  $\tau > 0$ , i.e. pour les délais positifs, tandis que le deuxième terme est non nul uniquement pour les délais négatifs ( $\tau < 0$ ). Cette équation montre que quelque soit l'ordre d'arrivée des impulsions, la population  $n_{21^*}^{(2)}$  décroît exponentiellement avec le temps de déclin des populations  $T_1$ . Suivant le principe de causalité, nous ne considérons que les délais positifs par la suite :

$$n_{21^*}^{(2)} = \left( \frac{\mu}{\hbar} \right)^2 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-\gamma_1(t-\tau) - \gamma_2 \tau + i(\phi_2 - \phi_1)} H(t - \tau) \quad (1.25)$$

La figure 1.7 (b) illustre schématiquement l'évolution de  $n_{21^*}^{(2)}$  en fonction du temps pour  $\tau > 0$ . On trouve finalement l'expression de la polarisation d'ordre trois en résolvant l'équation 1.18c et en sélectionnant la combinaison de phase  $2\phi_2 - \phi_1$  :

$$p_{221^*}^{(3)} = 2i \left( \frac{\mu}{\hbar} \right)^3 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{-\gamma_2 t + i(\omega_0 t + 2\phi_2 - \phi_1)} H(t - \tau) \quad (1.26)$$

La polarisation  $p_{221^*}^{(3)}$  est maximale à  $t = \tau$  (le temps d'arrivée de la deuxième impulsion) et s'amortit exponentiellement avec  $T_2$ . En variant le délai  $\tau$  entre les deux impulsions, il est ainsi possible de mesurer directement le déclin des cohérences de l'exciton. La figure 1.7 (c) illustre schématiquement ce déclin en fonction du temps (sans la partie oscillante). Afin de déterminer le signal D-FWM que l'on mesure, nous devons considérer la polarisation induite :

$$\mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{d}}(t) = \text{Tr}(\mu\rho) = \mu p_{221^*}^{(3)} \quad (1.27)$$

Le signal D-FWM mesuré spectralement correspond au module de la transformée de Fourier de l'équation 1.27 :

$$\begin{aligned} S_{\text{FWM}}^{\text{d}}(\omega) &= \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left| \int_0^\infty \mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{d}}(t) e^{-i\omega t} dt \right| \\ &= \frac{2\mu^4 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{-\gamma_2 \tau}}{\sqrt{2\pi} \hbar^3 \sqrt{\gamma_2^2 + \Delta^2}} \end{aligned} \quad (1.28)$$

Le signal D-FWM mesuré correspond donc à une fonction lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $2\gamma_2$ . En augmentant le délai  $\tau$  entre les deux impulsions, l'amplitude du pic diminue exponentiellement avec le temps de cohérence  $T_2$ .

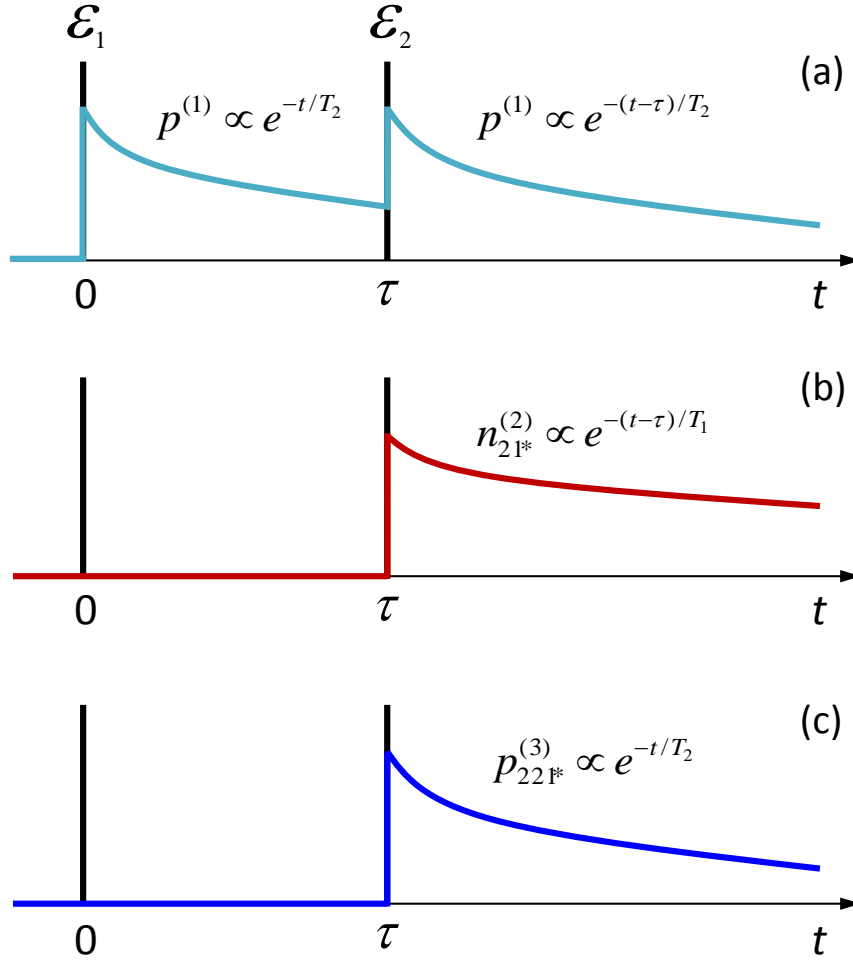


FIGURE 1.7 – Représentation schématique des solutions des EBO pour deux impulsions  $\delta_i$  séparées d'un délai  $\tau$  pour (a) la polarisation de premier ordre, (b) la population de second ordre, et (c) la polarisation de troisième ordre (sans les parties oscillantes des polarisations).

### 1.2.5 Solution analytique pour trois impulsions : FWM non-dégénéré

Il est également possible de générer et détecter le signal FWM non-dégénéré (ND-FWM) d'une BQ en utilisant trois impulsions optiques pour créer la polarisation non-linéaire :

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E_1^* E_2 E_3 = \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{i(\omega_3 + \omega_2 - \omega_1)t} + c.c. \quad (1.29)$$

Chaque impulsion, d'amplitude  $\mathcal{E}_i$ , modulée à la fréquence  $\Omega_i$ , acquiert une phase relative  $\phi_i$  et excite la BQ au temps  $t = 0$ ,  $t = \tau_1$  et  $t = \tau_2$ , avec  $\tau_2 > \tau_1$ . Le champ ressenti par la BQ est donc le suivant :

$$E(t) = \left[ \mathcal{E}_1 \delta(t) e^{i\phi_1} + \mathcal{E}_2 \delta(t - \tau_1) e^{i\phi_2} + \mathcal{E}_3 \delta(t - \tau_2) e^{i\phi_3} \right] e^{i\omega_0 t} + c.c. \quad (1.30)$$

De la même manière que pour le cas à deux impulsions, on peut calculer la matrice densité pour chaque ordre de perturbation en respectant le principe de causalité et en

sélectionnant la combinaison de phase  $\phi_3 + \phi_2 - \phi_1$ , on trouve alors :

$$p^{(1)} = \frac{-i\mu}{\hbar} \left[ \begin{aligned} &\mathcal{E}_1 e^{-\gamma t + i\phi_1} H(t) + \mathcal{E}_2 e^{-\gamma(t-\tau_1) + i(\phi_2 + i\omega_0\tau_1)} H(t - \tau_1) \\ &+ \mathcal{E}_3 e^{-\gamma(t-\tau_2) + i(\phi_3 + i\omega_0\tau_2)} H(t - \tau_2) \end{aligned} \right] \quad (1.31a)$$

$$n_{21^*}^{(2)} = \left(\frac{\mu}{\hbar}\right)^2 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 e^{-\gamma_1(t-\tau_1) - \gamma_2\tau_1 + i(\phi_2 - \phi_1)} H(t - \tau_1) \quad (1.31b)$$

$$p_{321^*}^{(3)} = 2i \left(\frac{\mu}{\hbar}\right)^3 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{-\gamma_2(t-\tau_2+\tau_1) - \gamma_1(\tau_2-\tau_1) + i(\omega_0 t + \phi_3 + \phi_2 - \phi_1)} H(t - \tau_2) \quad (1.31c)$$

Comme pour l'excitation à deux impulsions, on observe que la polarisation de troisième ordre  $p_{321^*}^{(3)}$  s'amortit exponentiellement avec  $T_2$ . En fixant le délai  $\tau_2 - \tau_1$  entre  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  et en variant  $\tau_1$ , il est possible de mesurer le déclin des cohérences en intégrant temporellement le signal ND-FWM. Le maximum de cohérence correspond à  $\tau_2 - \tau_1 = 0$  (délai nul entre  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ ). Par ailleurs, on remarque un terme d'amortissement additionnel par rapport au cas à deux impulsions en  $\gamma_1(\tau_2 - \tau_1)$ . Ce terme traduit l'amortissement des populations entre  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ . Ainsi, en fixant le délai  $\tau_1$  et en variant le délai  $\tau_2$ , il est possible de mesurer le déclin des populations en intégrant temporellement le signal ND-FWM. Le maximum de population correspond à  $\tau_1 = 0$  (délai nul entre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ ). Dans la suite du manuscrit, nous noterons  $\tau_{12}$  pour faire référence au délai entre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  et  $\tau_{23}$  pour faire référence au délai entre  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ . La figure 1.8 illustre schématiquement l'évolution de  $p^{(1)}$ ,  $n_{21^*}^{(2)}$  et  $p_{321^*}^{(3)}$  en fonction du temps  $t$  après chaque impulsion (sans les parties oscillantes des polarisations). Comme précédemment, le signal ND-FWM mesuré spectralement correspond au module de la transformée de Fourier de la polarisation, on trouve finalement :

$$S_{\text{FWM}}^{\text{nd}}(\omega) = \frac{2\mu^4 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{-\gamma_2\tau_{12} - \gamma_1\tau_{23}}}{\sqrt{2\pi\hbar^3} \sqrt{\gamma_2^2 + \Delta^2}} \quad (1.32)$$

Le signal ND-FWM mesuré correspond donc à une fonction lorentzienne de largeur à mi-hauteur  $2\gamma_2$ . En augmentant le délai  $\tau_{12}$  entre les deux premières impulsions, l'amplitude du pic diminue exponentiellement avec le temps de cohérence  $T_2$  de l'exciton. Tandis qu'en augmentant le délai  $\tau_{23}$  entre les deux dernières impulsions, l'amplitude du pic diminue exponentiellement avec le temps de population  $T_1$  de l'exciton.

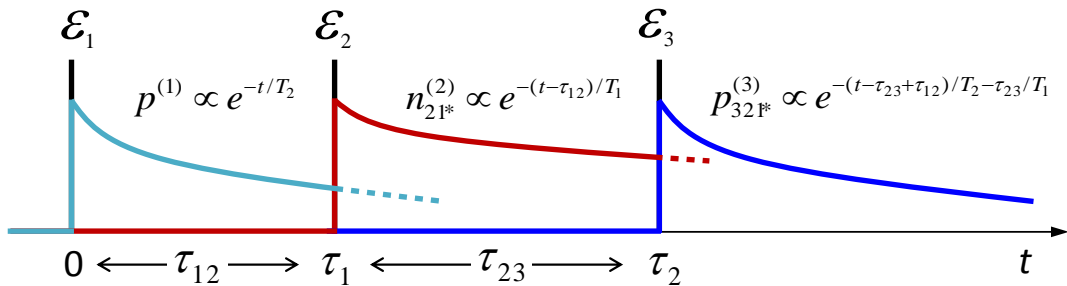


FIGURE 1.8 – Représentation schématique des solutions des EBO pour trois impulsions  $\delta_i$  séparées des délais  $\tau_{12}$  et  $\tau_{23}$  pour la polarisation de premier ordre (bleu clair), la population de second ordre (rouge), et la polarisation de troisième ordre (bleu foncé).

En résumé, le signal ND-FWM créé par trois impulsions permet de mesurer à la fois le déclin des cohérences et des populations, contrairement au signal D-FWM créé par deux

impulsions qui permet de mesurer uniquement le déclin des cohérences. Pour des raisons pratiques essentiellement, les mesures de décohérence présentées dans ce manuscrit ont été réalisées le plus souvent en mesurant le signal D-FWM.

### 1.3 Vecteur de Bloch

Il est souvent très utile de représenter de manière vectorielle l'évolution des EBO. On définit le *vecteur de Bloch*  $\vec{B}$  dont les trois coordonnées sont données par :

$$u = \tilde{\rho}_{ge} + \tilde{\rho}_{eg} = 2\Re[\tilde{\rho}_{eg}] \quad (1.33a)$$

$$v = i(\tilde{\rho}_{ge} - \tilde{\rho}_{eg}) = 2\Im[\tilde{\rho}_{eg}] \quad (1.33b)$$

$$w = \rho_{ee} - \rho_{gg} \quad (1.33c)$$

La coordonnée  $w$  du vecteur de Bloch correspond à l'inversion de population, tandis que les coordonnées  $u$  et  $v$  correspondent aux parties réelle et imaginaire de la polarisation. On peut alors réécrire les équations 1.8 en fonction des coordonnées du vecteur de Bloch :

$$\dot{u} = -\Delta v - \frac{u}{T_2} \quad (1.34a)$$

$$\dot{v} = \Omega_R w + \Delta u - \frac{v}{T_2} \quad (1.34b)$$

$$\dot{w} = -\Omega_R v - \frac{w + 1}{T_1} \quad (1.34c)$$

La fonction d'onde  $|\psi\rangle$  d'un état pur peut se décomposer sur la base de ses états propres de la manière suivante [2] :

$$|\psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}|g\rangle + e^{i\phi}\sin\frac{\theta}{2}|e\rangle \quad (1.35)$$

où  $\theta$  et  $\phi$  correspondent aux coordonnées polaires du vecteur de Bloch. On peut alors montrer que l'évolution des populations et des cohérences dépend uniquement de  $\theta$  et  $\phi$  telles que :

$$u + iv = \sin\theta e^{-i\phi} \quad (1.36a)$$

$$w = -\cos\theta \quad (1.36b)$$

Le vecteur de Bloch se déplace donc sur une sphère de rayon  $1/2$  appelée *sphère de Bloch*. La figure 1.9 illustre schématiquement le vecteur et la sphère de Bloch d'un état pur. Les pôles  $+z$  et  $-z$  de la sphère représentent les populations de l'état fondamental  $|g\rangle$  et excité  $|e\rangle$ , et le plan équatorial  $x\mathcal{O}y$  représente le plan complexe  $(u + iv)$  des cohérences. La sphère de Bloch permet d'expliquer et de visualiser l'évolution de l'état quantique d'un  $2\mathcal{LS}$  de manière simple, comme par exemple les oscillations de Rabi d'un exciton (cf chapitre 3). Par la suite, bon nombre d'opérations quantiques abordées dans ce manuscrit seront décrites avec la sphère de Bloch.

#### 1.3.1 Précession du vecteur de Bloch

Considérons maintenant un champ électrique  $\mathcal{E} \cos(\omega t - \phi)$  en interaction avec un  $2\mathcal{LS}$  initialement dans son état fondamental. Le vecteur de Bloch décrivant l'évolution du  $2\mathcal{LS}$  peut alors s'écrire :

$$\dot{\vec{B}} = \vec{\Omega}_B \wedge \vec{B} - \vec{\gamma}_{relax} \cdot \vec{B} \quad (1.37)$$

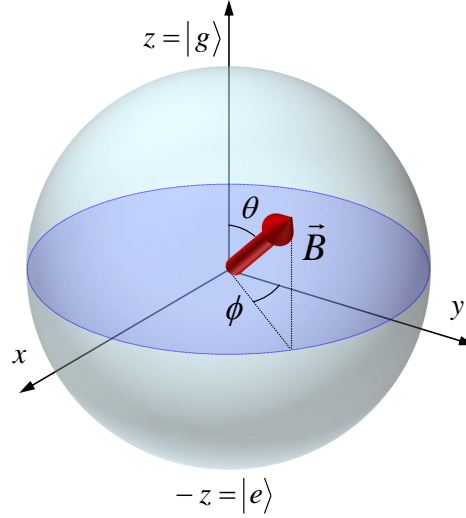


FIGURE 1.9 – Représentation du vecteur de Bloch pour un état pur.

où le vecteur  $\vec{\Omega}_B = (\Omega_R \cos \phi, \Omega_R \sin \phi, -\Delta)$  décrit la *précession* du vecteur de Bloch et le vecteur  $\vec{\gamma}_{relax} = (1/T_2, 1/T_2, 1/T_1)$  décrit la relaxation des cohérences et des populations. Dans le cas résonant ( $\Delta = 0$ ), la précession du vecteur de Bloch s'effectue dans le plan équatorial  $xOy$  qui représente le plan complexe des cohérences. Le signal FWM que l'on mesure correspond à la projection de Bloch dans ce plan. Pour un cas pur, il n'y a pas de relaxation, la norme du vecteur de Bloch reste constante au cours du temps et correspond au rayon de la sphère de Bloch. Dans le cas d'un état mixte, la relaxation entraîne une diminution de la norme du vecteur de Bloch qui se déplace dans la sphère de Bloch. Nous allons maintenant résoudre les équations 1.34 pour deux configurations : premièrement sans relaxation et deuxièmement sans champ électrique. Dans les deux cas, nous ne tiendrons pas compte de la phase du champ électrique. Ces deux cas de figures permettront de comprendre les oscillations de Rabi et l'évolution libre d'un  $2\mathcal{LS}$ , que l'on abordera plus en détail dans la suite du manuscrit.

### 1.3.2 Solution sans relaxation : oscillations de Rabi

Sans décohérence, i.e.  $T_1 = T_2 = \infty$ , et en considérant un champ électrique suffisamment intense tel que  $\Omega_R \gg \Delta$ , les équations 1.34 se simplifient pour donner :

$$\dot{u} = 0 \quad (1.38a)$$

$$\dot{v} = \Omega_R w \quad (1.38b)$$

$$\dot{w} = -\Omega_R v \quad (1.38c)$$

En assumant que le  $2\mathcal{LS}$  est dans son état fondamental avant l'excitation, i.e.  $\vec{B} = (0, 0, -1)$ , les solutions des équations 1.38 sont :

$$u(t) = 0 \quad (1.39a)$$

$$v(t) = -\sin(\Omega_R t) \quad (1.39b)$$

$$w(t) = -\cos(\Omega_R t) \quad (1.39c)$$

Dans ces conditions, la précession du vecteur de Bloch correspond à une rotation dans le plan  $yOz$ , illustrée schématiquement sur la figure 1.10 (a). Le signal FWM mesuré,

qui correspond à la norme du vecteur de Bloch projeté dans le plan équatorial oscille en  $|\sin(\Omega_R t)|$ . En augmentant la puissance d'excitation, le signal FWM décrit des *oscillations de Rabi* (voir chapitre 3). Cette précession est extrêmement utile, car elle permet de contrôler l'état quantique du  $2\mathcal{LS}$ . L'angle de rotation du vecteur de Bloch est alors donné par  $\Theta = \Omega_R t$ . Dans le cas d'une impulsion optique, cet angle correspond à l'aire de l'impulsion. Une impulsion " $\pi/2$ " engendre à une rotation du vecteur de Bloch sur l'axe  $y$  correspondant au maximum de cohérence, et donc au maximum de signal FWM. Tandis qu'une impulsion " $\pi$ " engendre à une rotation du vecteur de Bloch sur l'axe  $-z$  correspondant au maximum de population (signal FWM nul). Ainsi, le signal D-FWM est maximal quand  $\Theta_1 = \pi/2$  et  $\Theta_2 = \pi$  et le signal ND-FWM est maximal quand  $\Theta_1 = \Theta_2 = \Theta_3 = \pi/2$ . Nous utiliserons ce type de notation dans la suite du manuscrit.

### 1.3.3 Solution sans champ électrique : évolution libre

Intéressons nous maintenant à l'évolution libre du  $2\mathcal{LS}$  après l'excitation. Sans champ électrique ( $\Omega_R = 0$ ), les équations 1.34 se simplifient pour donner :

$$\dot{u} = -\Delta v - \frac{u}{T_2} \quad (1.40a)$$

$$\dot{v} = \Delta u - \frac{v}{T_2} \quad (1.40b)$$

$$\dot{w} = -\frac{w+1}{T_1} \quad (1.40c)$$

En prenant comme état initial  $\vec{B} = (0, 1, 0)$ , les solutions des équations 1.40 sont :

$$u(t) = [\cos(\Delta t)u(0) - \sin(\Delta t)v(0)] e^{-\frac{t}{T_2}} \quad (1.41a)$$

$$v(t) = [\sin(\Delta t)u(0) + \cos(\Delta t)v(0)] e^{-\frac{t}{T_2}} \quad (1.41b)$$

$$w(t) = [w(0) + 1] e^{-\frac{t}{T_1}} - 1 \quad (1.41c)$$

On retrouve bien que la norme du vecteur de Bloch projetée sur l'axe des populations décroît exponentiellement avec  $T_1$ . Dans le plan des cohérences, la norme vecteur de Bloch décroît exponentiellement avec  $T_2$  et tourne à la fréquence du désaccord  $\Delta$ . La figure 1.10 (b) illustre schématiquement la rotation du vecteur de Bloch dans le plan des cohérences pour  $t \ll T_2$ .

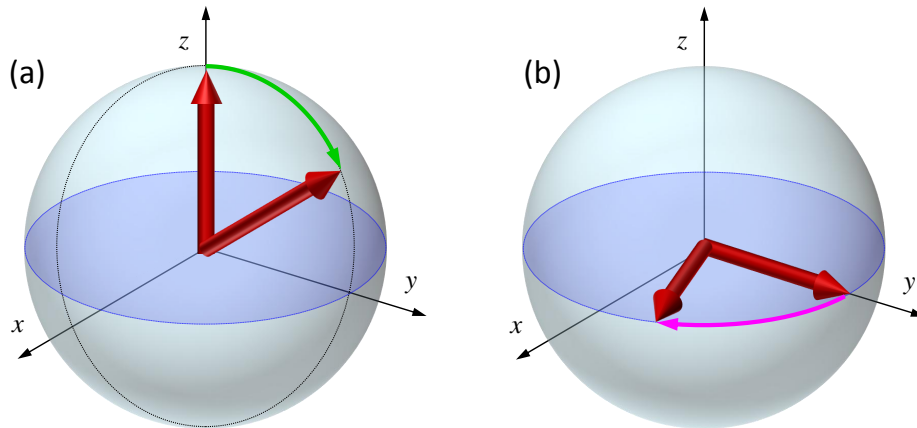


FIGURE 1.10 – Précession du vecteur de Bloch (a) sans relaxation ( $T_1 = T_2 = \infty$ ) et (b) sans champ extérieur ( $t \ll T_2$ ).





## Chapitre 2

# Mélange à quatre ondes hétérodyne d'une boîte quantique unique

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Contexte et motivations</b>	<b>22</b>
2.1.1	FWM d'un ensemble de boîtes quantiques	22
2.1.2	FWM d'une boîte quantique unique	24
<b>2.2</b>	<b>Dispositif expérimental : Mélange à quatre ondes hétérodyne</b>	<b>25</b>
2.2.1	Correction du <i>chirp</i>	25
2.2.1.1	Autocorrélation en intensité	30
2.2.2	Excitation de l'échantillon	31
2.2.2.1	Couplage avec l'échantillon	31
2.2.2.2	Nanopositionnement et imagerie hyperspectrale	33
2.2.3	Détection du signal	34
2.2.3.1	Collection du signal	34
2.2.3.2	Hétérodynage optique	34
2.2.3.3	Interférométrie spectrale	38
2.2.3.4	Détection balancée	38
2.2.3.5	Réponse temporelle du spectromètre	43
<b>2.3</b>	<b>Échantillons : Microcavités optiques planaires</b>	<b>45</b>
2.3.1	Confinement de la lumière dans une microcavité optique	45
2.3.2	Description des échantillons	46
<b>2.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>49</b>

---

Ce chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental et des échantillons utilisés. Il s'agit d'une expérience de spectroscopie cohérente non-linéaire qui permet de mesurer la polarisation non-linéaire de troisième ordre d'objet unique tel qu'une BQ. Tout d'abord, j'aborderai le contexte et les motivations qui nous ont amenés à développer ce type d'expérience qui représente un challenge expérimental. Je détaillerai ensuite le dispositif expérimental de mélange à quatre ondes hétérodyne que j'ai développé durant la première année de ma thèse. Enfin je présenterai les échantillons utilisés pour réaliser les résultats présentés dans les chapitres 3, 4 et 5.

## 2.1 Contexte et motivations

Dans le chapitre 1, nous avons vu que la dynamique d'un système à deux niveaux ( $2\mathcal{LS}$ ), décrit par les équations de Bloch optiques, est régi par deux temps de relaxation caractéristiques : le temps de population  $T_1$  et le temps de cohérence  $T_2$ . Nous avons également vu qu'il est possible d'extraire ces temps de relaxation en mesurant la polarisation non-linéaire de troisième ordre. Pour mesurer cette polarisation non-linéaire, nous utilisons une technique de spectroscopie cohérente non-linéaire qui consiste à exciter l'échantillon avec une série d'impulsions optiques, ultra-courtes, résonantes avec la transition, et à mesurer le signal de *mélange à quatre ondes* (FWM). On distingue alors deux types d'expériences : la mesure de la polarisation *macroscopique* d'un ensemble d'excitons, et la mesure de la polarisation *microscopique* d'un seul exciton.

### 2.1.1 FWM d'un ensemble de boîtes quantiques

Dans une expérience typique de FWM à deux faisceaux, l'échantillon est excité par une impulsion pompe  $\mathcal{E}_1$  de fréquence  $\omega_1$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}_1$  et une impulsion sonde  $\mathcal{E}_2$  retardée d'un délai  $\tau$ , de fréquence  $\omega_2$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}_2$ . Lorsque la pompe excite l'échantillon, elle crée une polarisation macroscopique de premier ordre  $\mathcal{P}^{(1)} = \chi^{(1)}\mathcal{E}_1 e^{i(\omega_1 t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})}$  générée par l'oscillation collective de milliards de dipôles à la fréquence  $\omega_1$ . Au temps  $t = \tau$  après la pompe, l'impulsion sonde excite l'échantillon et crée également une polarisation de premier ordre oscillant à la fréquence  $\omega_2$ . L'interférence entre les polarisations de la pompe et de la sonde donne lieu à la population de second ordre  $\mathcal{N}^{(2)} = \chi^{(2)}\mathcal{E}_1\mathcal{E}_2 e^{i(\omega_2 - \omega_1)t + i(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}}$  qui oscille à la fréquence  $\omega_2 - \omega_1$ . Elle résulte de l'excitation d'un grand nombre d'excitons, qui engendre l'apparition d'un réseau de densité dans l'échantillon se propageant suivant le vecteur d'onde  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$  (voir figure 2.1). La sonde est auto-diffractée par ce réseau, à la fois dans le temps et dans l'espace, et génère la polarisation de troisième ordre  $\mathcal{P}^{(3)} = \chi^{(3)}\mathcal{E}_1\mathcal{E}_2^2 e^{i(2\omega_2 - \omega_1)t + i(2\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{r}}$  oscillant à la fréquence  $2\omega_2 - \omega_1$  et se propageant suivant le vecteur d'onde  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . La mesure temporelle du déclin de cette polarisation non-linéaire en fonction du délai  $\tau$  entre la pompe et la sonde, donne un accès direct à la dynamique des cohérences de l'ensemble des excitons. Ce type d'expérience a permis d'étudier avec succès le déphasage intrinsèque de la décohérence d'excitons sur des ensembles de BQs [23, 24, 19] en mesurant l'évolution temporelle de l'écho de photon généré par la remise en phase des dipôles afin de s'affranchir des inhomogénéités d'énergie entre les BQs. La figure 2.2 illustre le principe de l'expérience d'écho de photon. La pompe excite un très grand nombre de BQs qui oscillent à leurs fréquences de résonance propres  $\omega_i$ . Au délai  $\tau$  après l'impulsion, chaque oscillateur  $i$  accumule une phase  $\omega_i\tau$ . Quelques dizaines de femtosecondes suffisent pour brouiller la phase de l'ensemble des oscillateurs, détruisant ainsi la cohérence excitonique de l'ensemble. Lorsque l'impulsion sonde arrive au temps  $\tau_1 = \tau$ , elle génère la polarisation non-linéaire de troisième ordre pour chaque exciton oscillant à la fréquence  $\omega_i$ . Au temps  $\tau_2$  après l'impulsion sonde, la phase de chaque oscillateur est  $\omega_i(\tau_2 - \tau_1)$ . Ainsi, lorsque  $\tau_2 = \tau_1 = \tau$ , la phase globale de l'ensemble des oscillateurs est nulle. Cette conjugaison de phase de l'ensemble des dipôles excitoniques entraîne une interférence constructive qui se traduit par l'apparition d'un fort signal d'écho de photon à  $t = 2\tau$ , dont l'amplitude est proportionnelle à la polarisation excitonique résiduelle. En variant le délai  $\tau$  entre la pompe et la sonde, il est alors possible de suivre le déclin temporel de l'amplitude de l'écho, et donc de mesurer la dynamique de la polarisation excitonique.

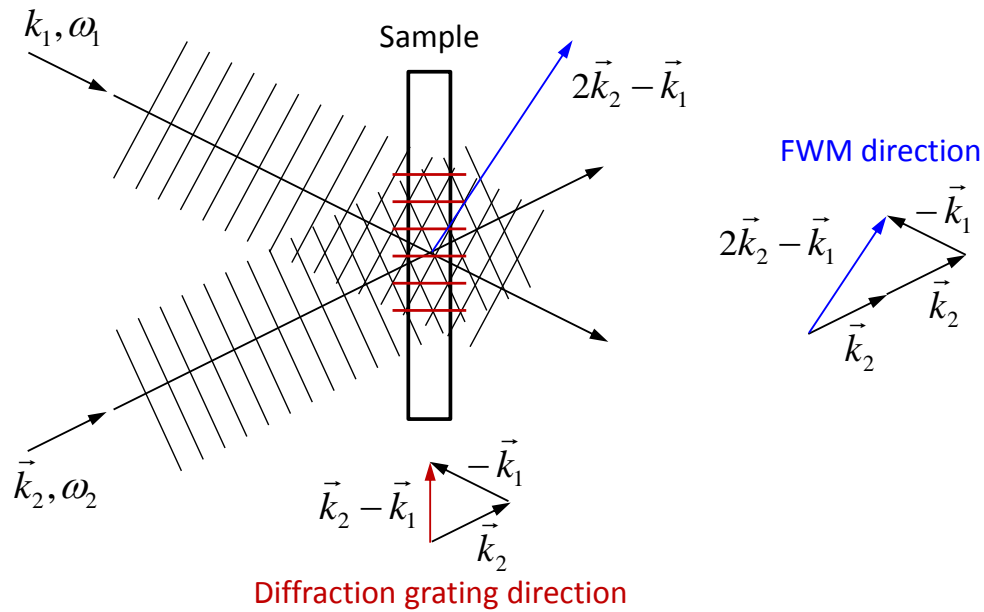


FIGURE 2.1 – Interférences des deux faisceaux de vecteurs d’ondes  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  sur l’échantillon. Le réseau de diffraction est formé suivant la direction  $\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Le signal FWM est émis suivant la direction  $2\vec{k}_2 - \vec{k}_1$ .

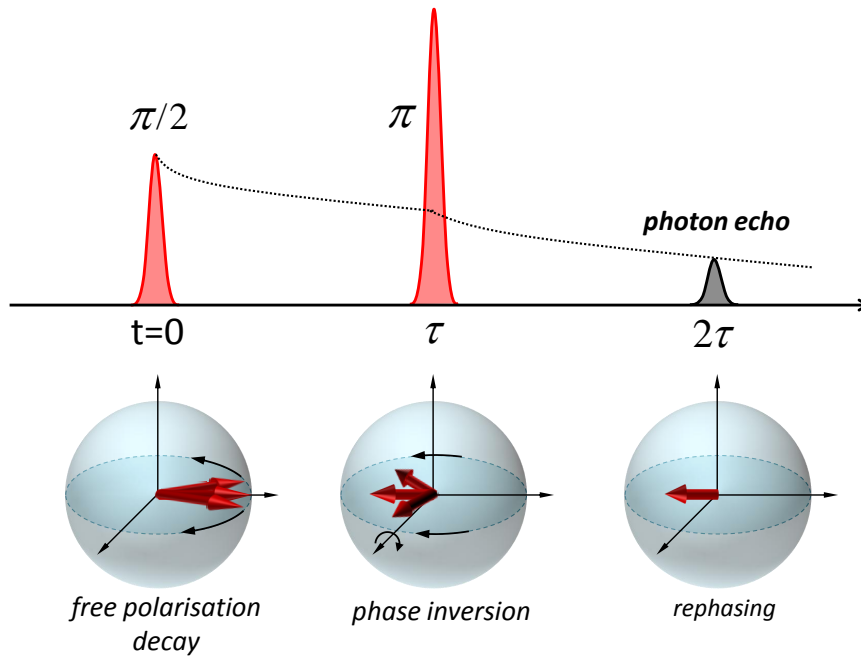


FIGURE 2.2 – **Principe d’une expérience d’écho de photon.** Après l’impulsion pompe  $\pi/2$ , l’évolution libre de la polarisation excitonique se traduit par la rotation du vecteur de Bloch dans le plan équatorial des cohérences. Chaque exciton accumule une phase  $\omega_i\tau$ , représentée par plusieurs vecteurs. La décohérence des excitons entraîne la diminution des vecteurs de Bloch au cours du temps. L’arrivée de l’impulsion sonde  $\pi$  se traduit par une inversion de phase non-perturbative, et entraîne la remise en phase des dipôles excitoniques à  $t = 2\tau$ , caractérisée par un écho de photon. L’amplitude de cet écho est directement reliée à la décohérence des excitons, i.e. la norme du vecteur de Bloch projeté dans le plan des cohérences. La largeur temporelle de l’écho est inversement proportionnelle à l’élargissement spectral inhomogène de l’ensemble de BQs.

### 2.1.2 FWM d'une boîte quantique unique

Mesurer le signal FWM d'une seule BQ s'avère beaucoup plus compliqué expérimentalement. Premièrement, la taille typique d'une BQ InAs/GaAs est de l'ordre d'une dizaine de nanomètres. Or, la longueur d'onde des interférences spatiales de la pompe et de la sonde dans GaAs est de l'ordre de  $\lambda/n_{\text{GaAs}} = 910 \text{ nm}/3.5 = 260 \text{ nm}$ . La taille d'une BQ est donc un ordre de grandeur plus petite que la distance entre deux franges d'interférences.

Deuxièmement, le signal ne provient plus de la remise en phase de milliards de dipôles générant un fort signal d'écho, mais du dipôle d'un seul exciton. La force du signal dépend donc uniquement du couplage dipolaire entre le champ électrique des impulsions et le dipôle de l'exciton. Sans nanostructure, l'amplitude du signal FWM d'un exciton unique est très faible devant celle de l'excitation résonante. Extraire l'émission cohérente d'un seul exciton constitue un challenge expérimental. Cela peut être réalisé avec une détection hétérodyne optique [23, 25, 26, 27] du signal FWM. Cette technique, illustrée sur la figure 2.3, consiste à moduler la pompe et la sonde à des radio-fréquences bien définies,  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  respectivement. En interférant, les polarisations de la pompe et de la sonde génèrent un réseau temporel de densité, créé par l'accumulation de phase  $\phi_2 - \phi_1$  entre la pompe et la sonde ( $\approx 10^6$  impulsions/intégration). La sonde est auto-diffractée temporairement sur ce réseau, et génère ainsi la polarisation de troisième ordre  $\mathcal{P}^{(3)} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{i\omega_0 t} e^{i(2\Omega_2 - \Omega_1)t}$  oscillant à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_D$  où  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$  est la fréquence de détection hétérodyne. En démodulant le signal sur la fréquence  $\Omega_D$  et en mesurant l'amplitude des interférences spectrales avec un faisceau de référence oscillant à la fréquence  $\omega_0$ , il est alors possible de mesurer directement l'amplitude et la phase [28, 29] du signal FWM de BQs individuelles [30, 31]. Les détails sur cette technique d'*interférométrie spectrale hétérodyne* (HSI) sont donnés dans la partie 2.2.3.

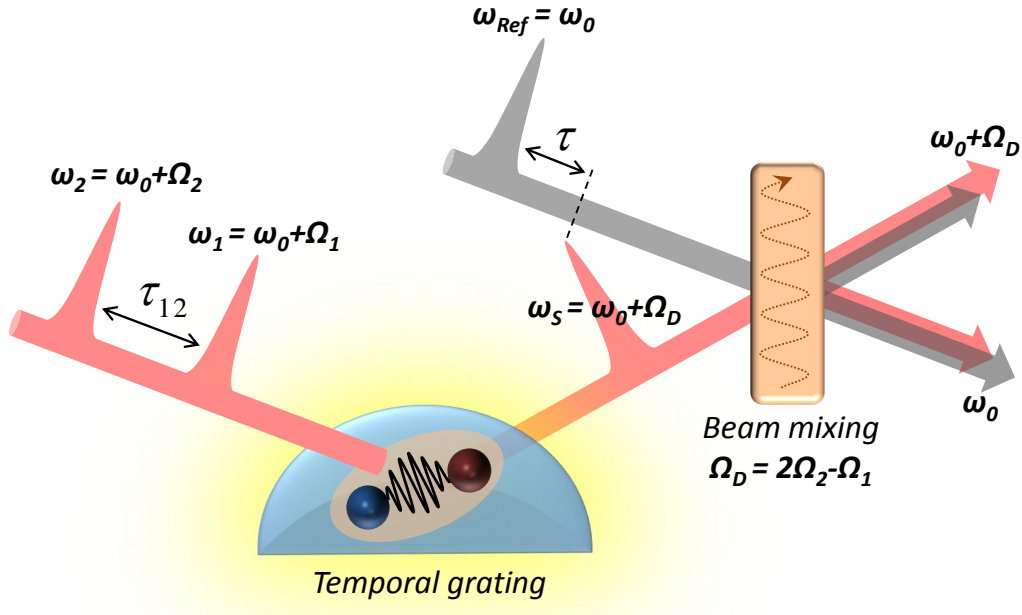


FIGURE 2.3 – **Détection hétérodyne optique.** La fréquence optique de la référence est  $\omega_{Ref} = \omega_0$  où  $\omega_0$  est la fréquence optique du laser sans modulation. Les fréquences optiques de la pompe et de la sonde sont respectivement  $\omega_0 + \Omega_1$  et  $\omega_0 + \Omega_2$  où  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  sont des radio-fréquences. Le signal  $\mathcal{E}_S$  oscille à la fréquence optique  $\omega_S = \omega_0 + \Omega_D$  où  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$  est la fréquence de détection hétérodyne.

Les informations obtenues peuvent être utilisées pour construire la carte bidimensionnelle ( $\omega_1$  vs  $\omega$ ) du signal FWM, fournissant des détails sur les couplages entre plusieurs états excitoniques et permettant de distinguer les couplages cohérents et incohérents [32, 13, 33]. Cependant, ces mesures se sont limitées jusqu'à présent à l'étude d'excitons de grandes forces d'oscillateurs [34, 35, 36] ou en couplage fort dans une microcavité [37, 38]. Le dispositif expérimental développé durant la première année de ma thèse (voir figure 2.4) va au-delà de ces limitations, et permet de mesurer la réponse cohérente (cf chapitre 3) et les couplages cohérents (cf chapitre 4) d'excitons de faible force d'oscillateur, fortement confinés dans des BQs InAs/GaAs. Par ailleurs, l'ajout d'un troisième faisceau  $\mathcal{E}_3$  donne désormais accès à la dynamique des populations d'excitons individuels (cf chapitre 3) en mesurant le signal FWM non-dégénéré correspondant à la polarisation de troisième ordre  $\mathcal{P}^{(3)} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{i(\omega_3 + \omega_2 - \omega_1)t}$ . Ce dispositif à trois faisceaux a également permis de démontrer un nouveau type de protocole innovant pour contrôler la cohérence d'un exciton à travers une expérience de *mélange à six ondes* (cf chapitre 5).

J'insiste sur le fait que la complexité de ce dispositif expérimental réside dans la réalisation de la détection hétérodyne optique qui nécessite le développement et l'automatisation d'un mélangeur multi-fréquences synchronisé avec quatre modulateurs acousto-optiques (AOM) radio-fréquence, deux lignes à retard et une caméra CCD. Au cours de ce chapitre, nous allons voir les différentes étapes de la réalisation de ce dispositif expérimental, ainsi que les échantillons utilisés pour extraire efficacement la réponse cohérente d'une BQ unique.

## 2.2 Dispositif expérimental : Mélange à quatre ondes hétérodyne

La figure 2.4 illustre schématiquement l'ensemble dispositif expérimental. Il se décompose en trois parties que je vais détailler de la manière suivante :

- La préparation des impulsions dans la partie 2.2.1.
- L'excitation de l'échantillon dans la partie 2.2.2.
- La détection du signal dans la partie 2.2.3.

### 2.2.1 Correction du *chirp*

Dans cette expérience, nous utilisons une source laser Titane:Saphir à blocage de mode<sup>1</sup> qui délivre des impulsions optiques ultra-courtes temporellement  $\Delta t = 150$  fs (FWHM). Les impulsions sont limitées par transformée de Fourier, i.e.  $\Delta t \Delta \omega = 1$  où  $\Delta \omega$  représente la largeur spectrale des impulsions. Selon cette relation, plus l'impulsion est courte temporellement, plus son spectre est large. Dans un milieu dispersif, la vitesse de groupe d'une impulsion  $v_g = d\omega/dk$  est différente de la vitesse de phase  $v_\phi = \omega/k$  de ses composantes spectrales. Autrement dit, le paquet d'onde ne se propage pas à la même vitesse que les ondes qui le composent. On parle de dispersion *normale* lorsque l'indice de réfraction du milieu croît avec la fréquence de l'onde, le rouge va plus vite que le bleu. A l'inverse, on parle de dispersion *anormale* lorsque ce dernier décroît avec la fréquence de l'onde, le bleu va plus vite que le rouge. Cette dérive de fréquence, appelée *chirp*<sup>2</sup>, engendre un étalement temporel de l'impulsion. Plus le nombre de composantes spectrales est important, plus la dispersion et donc l'étalement temporel de l'impulsion est important. Nous allons

1. Spectra-Physics Tsunami Femto. Laser de pompage Coherent Verdi 10 à 532 nm.

2. Mot d'origine anglaise signifiant gazouillis pour exprimer les variations temporelles des fréquences.

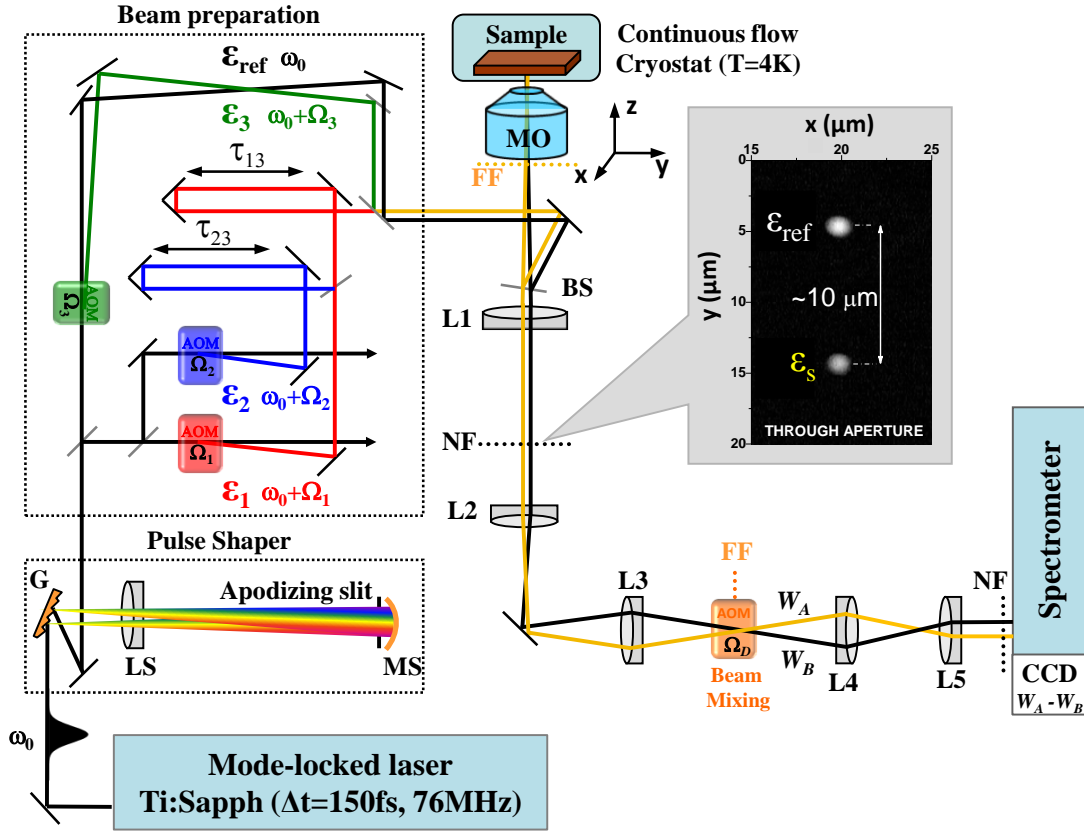


FIGURE 2.4 – Schéma général du dispositif expérimental. Le dispositif expérimental se décompose en trois parties : la préparation des impulsions, l'excitation de l'échantillon et la détection du signal. Les impulsions, générées par un laser à blocage de mode Titane : Saphir, sont dans un premier temps *pré-chirpées* par un façonneur passif d'impulsion composé d'un réseau G (1200 traits/mm), d'un doublet achromatique LS ( $f = 500$  mm) et d'un miroir sphérique MS ( $f = 304.8$  mm), afin de compenser la dispersion des éléments optiques de l'expérience. Le laser est ensuite divisé en quatre faisceaux,  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$ ,  $\mathcal{E}_3$  et  $\mathcal{E}_{Ref}$ , modulés en phase par le biais de modulateurs acousto-optiques (AOM) de fréquences  $\Omega_1$ ,  $\Omega_2$  et  $\Omega_3$  (la référence  $\mathcal{E}_{Ref}$  n'est pas modulée). Deux lignes à retard permettent d'ajuster les délais  $\tau_{13}$  et  $\tau_{23}$  entre  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ . Les différents faisceaux sont ensuite focalisés par un objectif de microscope MO ( $NA = 0.65$ ) sur l'échantillon refroidi à température cryogénique ( $T = 4$  K) dans un cryostat à hélium liquide. La réflectivité du laser, comprenant le signal  $\mathcal{E}_S$  et la réflectivité de la référence  $\mathcal{E}_{Ref}$ , sont ensuite collectées par une série de doublets achromatiques L1-L3 ( $f_1 = 300$  mm,  $f_2 = 100$  mm et  $f_3 = 60$  mm) et filtrées spatialement par deux diaphragmes (cf image). Les deux faisceaux sont ensuite mélangés dans un AOM à la fréquence de détection hétérodyne  $\Omega_D$ , de sorte que la référence soit diffractée sur le signal et vice-versa. Les faisceaux d'interférences résultants  $W_A$  et  $W_B$  sont finalement collectés par deux doublets achromatiques L4 et L5 ( $f_4 = 75$  mm et  $f_5 = 60$  mm) et imités spectralement sur une caméra CCD. NF : champ proche, FF : champ lointain.

maintenant quantifier la dispersion des impulsions laser à travers les éléments optiques du dispositif expérimental.

Prenons le cas d'une impulsion Gaussienne se propageant dans un milieu dispersif d'épaisseur  $z$ . Le champ électrique de l'impulsion peut s'écrire :

$$E(z, \omega) = \mathcal{E}(0, \omega) e^{ik(\omega)z} \quad (2.1)$$

où  $k(\omega)$  est le vecteur d'onde défini par la relation :

$$k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} \quad (2.2)$$

Effectuons un développement limité au second ordre du vecteur d'onde autour de la fréquence centrale  $\omega_0$  :

$$k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)k'_0 + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 k''_0 \quad (2.3)$$

où  $k'_0$  est l'inverse de la vitesse de groupe et  $k''_0$  est la dispersion de vitesse de groupe (DVG), telles que :

$$v_g = \left( \frac{dk}{d\omega} \right)^{-1} = \frac{c}{n_0 + \omega \frac{dn_0}{d\omega}} = \frac{c}{n_0 - \lambda \frac{dn_0}{d\lambda_0}} \quad (2.4)$$

$$\text{DVG} = \frac{d^2k}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \left( \frac{d^2n}{d\lambda^2} \right) \quad (2.5)$$

En remplaçant  $k(\omega)$  dans l'équation 2.1, et en calculant la transformée de Fourier, on obtient l'expression du champ électrique en fonction du temps :

$$E(z, t) = \mathcal{E}(0, t) \exp \left[ -\frac{(t - k'_0 z)^2}{2\Delta t(z)^2} \right] \exp \left[ -i \frac{(t - k'_0 z)^2}{2\Delta t(z)^2} k''_0 \Delta \omega^2 z \right] \quad (2.6)$$

où  $\Delta \omega$  est la largeur spectrale de l'impulsion et  $\Delta t(z)$  représente sa largeur temporelle telle que :

$$\Delta t(z)^2 = \Delta t_0^2 + (k''_0 \Delta \omega z)^2 \quad (2.7)$$

La largeur temporelle de l'impulsion ne dépend que de trois paramètres : la DVG, l'épaisseur du milieu dispersif et la largeur spectrale de l'impulsion. Comme attendu, on remarque que l'étalement temporel augmente avec la largeur spectrale de l'impulsion. Par ailleurs, plus le milieu dispersif est épais et d'indice élevé, plus cet élargissement est important.

La figure 2.5 (a) montre l'évolution de la largeur temporelle d'une impulsion laser pour  $\Delta t_0 = 150$  fs dans deux matériaux d'indices différents à 900 nm. Une grande majorité des éléments optiques pour le visible (VIS) et le proche infrarouge (NIR), tels que les lentilles, les miroirs, les cubes séparateurs, sont fabriqués en BK7, milieu d'indice  $n = 1.51$  à 900 nm. Ce type de matériau présente l'intérêt d'être très peu dispersif. Cependant, certains éléments optiques ont un indice de réfraction plus élevé. C'est le cas par exemple du cristal  $\text{TeO}_2$  des modulateurs acousto-optiques<sup>3</sup> (AOM), dont l'indice à 900 nm vaut  $n = 2.21$ . En traversant ce cristal, d'une épaisseur  $z = 2$  cm, les impulsions lasers sont

élargies temporellement comme le montre la figure 2.5 (b) qui illustre des mesures d'auto-corrélation en intensité des impulsions avant et après un AOM. Les détails de ces mesures sont donnés page 30.

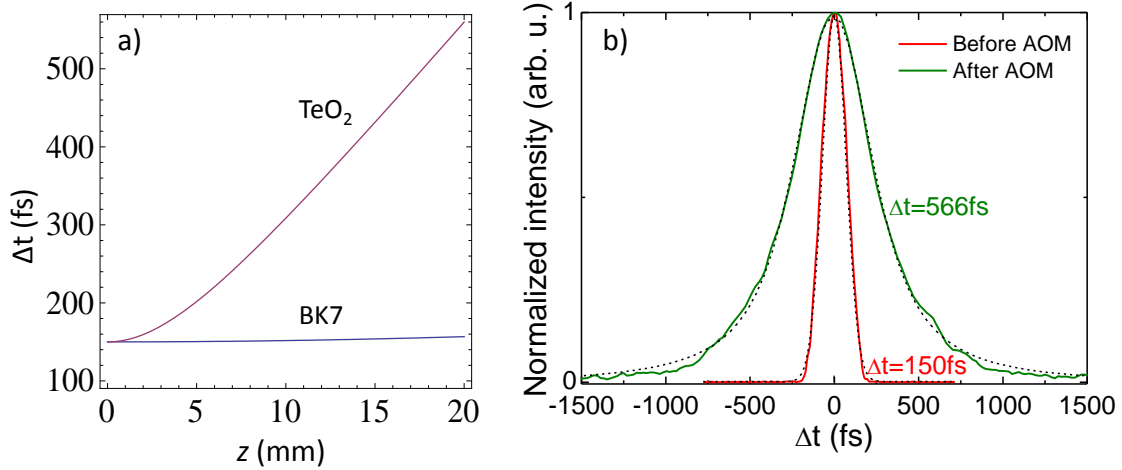


FIGURE 2.5 – **Dispersion d'une impulsion à travers un milieu dispersif.** (a) Simulation de la largeur temporelle d'une impulsion en fonction de l'épaisseur  $z$  de deux milieux dispersifs (BK7 et  $\text{TeO}_2$ ), pour une largeur initiale  $\Delta t_0 = 150$  fs et  $\lambda = 900$  nm. (b) Mesure d'auto-corrélation en intensité d'une impulsion laser sans dispersion (rouge) et dispersée par un AOM (vert). Les traits pointillés noirs représentent les ajustements gaussiens permettant d'extraire les largeurs temporelles à mi-hauteur des impulsions (FWHM).

Afin de corriger le *chirp* des impulsions, j'ai conçu un façonneur d'impulsion qui permet de pré-compenser la dispersion normale des optiques pour obtenir des impulsions limitées par transformée de Fourier au niveau de l'échantillon [39]. Il se compose d'un réseau gravé de 1200 traits/mm, d'un doublet achromatique de focale  $f_1 = 500$  mm et d'un miroir sphérique de focale  $f_2 = 304.8$  mm (cf figure 2.6). Des fentes d'apodisation placées dans le plan de Fourier du doublet achromatique permettent de filtrer spectralement de manière gaussienne le spectre de l'impulsion sans changer son profil spectral.

Étant donné que les rayons sont proches de l'axe optique et que les angles d'incidence sont faibles, l'approximation de Gauss est satisfaite. Il est donc possible de calculer la matrice de transfert du façonneur d'impulsion en utilisant la loi *ABCD*. Soit  $T_d$  et  $L_f$ , respectivement la matrice de transfert après propagation sur une distance  $d$  et la matrice de transfert d'une lentille de focale  $f$ , telles que :

$$T_d = \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad L_f = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -1/f & 1 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

La matrice de transfert de l'ensemble du façonneur s'exprime par le produit des matrices suivant :  $M = T_{L_2} L_{f_1} T_{f_1} L_{f_2} T_{f_1} L_{f_1} T_{L_2}$ . Soit  $(y_0, \alpha_0)$  et  $(y_1, \alpha_1)$  les coordonnées et les angles respectifs des faisceaux entrant et sortant du façonneur par rapport à l'axe optique, on obtient après calcul :

$$\begin{pmatrix} y_1 \\ \alpha_1 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} -1 & [2f_1 - f_1^2/f_2 - (L_1 + L_2)] \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} y_0 \\ \alpha_0 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

$L_0$ , que l'on appellera la position nulle, est la distance pour laquelle la DVG du façon-



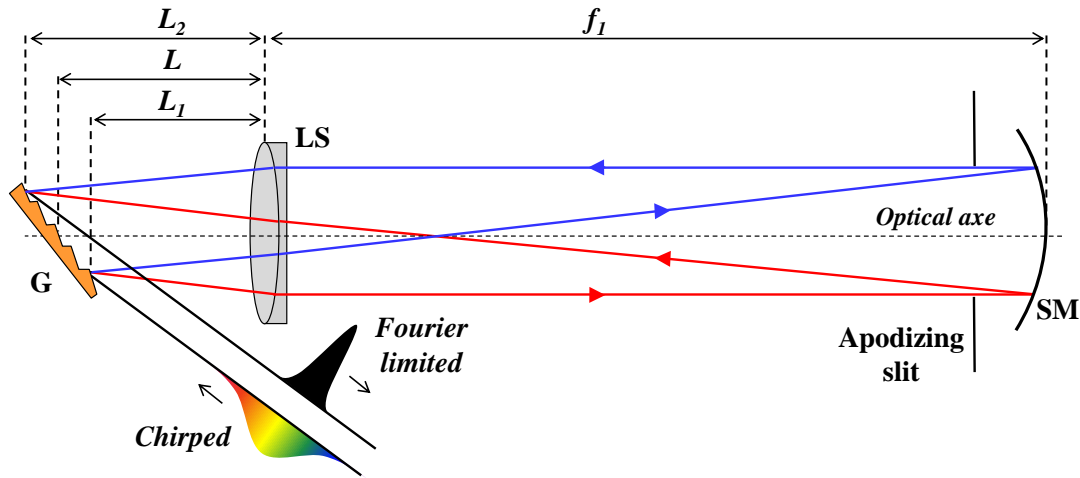


FIGURE 2.6 – **Schéma du façonneur d'impulsion.** G : réseau gravé de 1200 traits/mm blasé à 750 nm (angle blasé  $\theta = 26^{\circ}44'$ ). LS : doublet achromatique 2" recouvert d'une couche anti-reflet pour le NIR,  $f_1 = 500$  mm. SM : miroir sphérique 2" en or,  $f_2 = 304.8$  mm.  $L$ ,  $L_1$  et  $L_2$ , sont respectivement les distances réseau-lentille au niveau de l'axe optique, du faisceau incident et sortant.

neur est nulle. Sachant que  $L_0 = (L_1 + L_2)/2$ , il en résulte la condition suivante :

$$L_0 = f_1 - \frac{f_1^2}{2f_2} \quad (2.10)$$

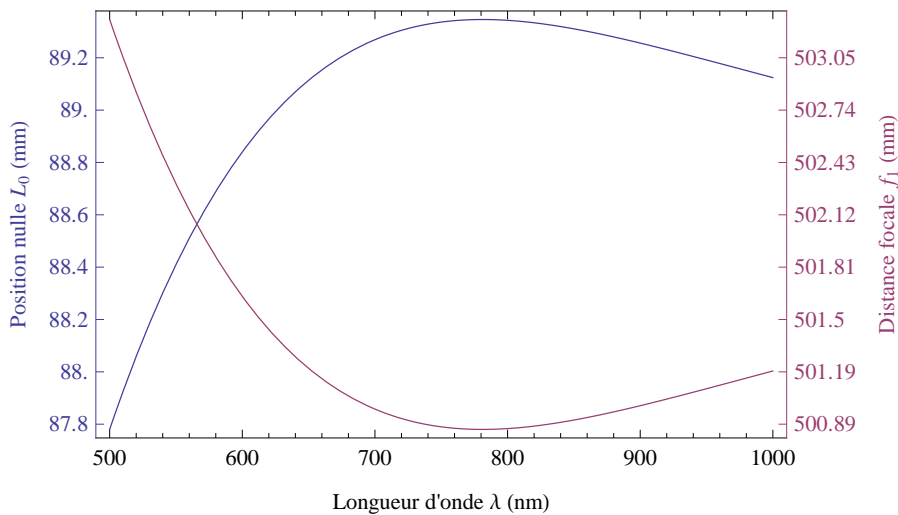


FIGURE 2.7 – Évolution de la position nulle  $L_0$  et de la distance focale  $f_1$  (données Thorlabs) en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ .

Comme la distance focale  $f_1$  du doublet achromatique dépend de la longueur d'onde, la valeur de la position nulle  $L_0$  ne sera pas la même suivant la longueur d'onde des impulsions. La figure 2.7 représente l'évolution de  $f_1$  et  $L_0$  en fonction de la longueur d'onde. On observe que la variation de  $L_0$  dans le NIR est négligeable (0.2 %), mais augmente significativement

en dessous de 700 nm. En ajustant la distance  $L$ , il est possible d'augmenter ou de diminuer la différence de chemin optique entre les composantes spectrales de l'impulsion. Lorsque  $L < L_0$ , le rouge parcourt moins de distance que le bleu, la dispersion du façonneur est normale. À l'inverse, lorsque  $L > L_0$ , le rouge parcourt plus de distance que le bleu, la dispersion du façonneur est anormale. La figure 2.8 illustre schématiquement les deux cas de figures.

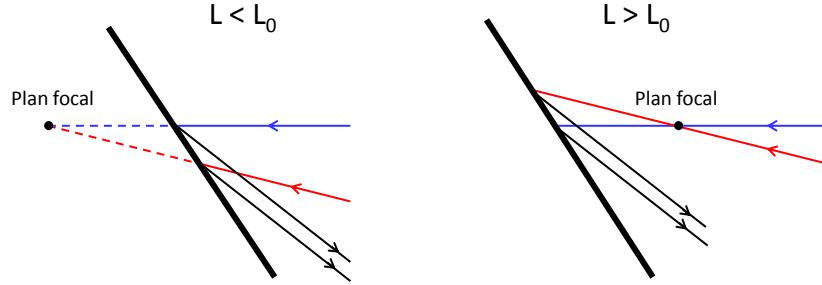


FIGURE 2.8 – Schéma des rayons optiques au niveau du réseau de diffraction pour une dispersion normale ( $L < L_0$ ) et anormale ( $L > L_0$ ).

### 2.2.1.1 Autocorrélation en intensité

Étant donné que les détecteurs optiques sont quadratiques, i.e. sensibles à l'intensité, il est impossible de mesurer directement le champ électrique d'une impulsion optique de manière linéaire. De plus, la bande passante des détecteurs les plus rapides est environ de quelques centaines de GHz. Il n'est donc pas possible de mesurer directement l'évolution de l'intensité en fonction du temps d'une impulsion ultra-rapide de quelques centaines de femtosecondes. Pour mesurer la largeur temporelle d'une impulsion brève, une des solutions consiste à mesurer le signal d'autocorrélation en intensité (cf figure 2.9).

Le principe est le suivant : le faisceau incident est divisé en deux par un miroir séparateur. Une ligne à retard permet d'ajuster le délai entre les deux faisceaux qui sont ensuite recombinés dans un cristal non-linéaire en LBO (Triborate de lithium  $\text{LiB}_3\text{O}_5$ ) pour générer un signal de seconde harmonique (SHG). L'intensité du signal SHG émis suivant la bissectrice des deux faisceaux incidents est proportionnelle au produit des intensités des deux faisceaux :

$$I_{SHG}(t, \tau) \propto I(t)I(t + \tau) \propto |E(t)|^2 |E(t + \tau)|^2 \quad (2.11)$$

Un photomultiplicateur mesure ensuite le signal proportionnel à l'intensité d'autocorrélation donné par l'équation 2.11 :

$$S_{ac}(t, \tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t)|^2 |E(t + \tau)|^2 dt \quad (2.12)$$

L'information sur la phase est donc perdue au cours de cette mesure, mais en connaissant la forme de l'impulsion il est possible de déduire sa largeur à mi-hauteur à partir de la largeur de l'autocorrélation. La figure 2.10 présente les mesures d'autocorrélation en intensité d'une impulsion optique traversant un AOM. Sans correction, la largeur à mi-hauteur (FWHM) vaut  $\Delta t = 566$  fs, soit environ quatre fois plus que la largeur temporelle en sortie de laser (limitée par transformée de Fourier). En introduisant une dispersion négative avec le façonneur pour pré-compenser la dispersion de l'AOM, nous retrouvons une largeur d'impulsion caractéristique d'un laser Ti:Saphir ( $\Delta t = 143$  fs) après le passage d'un AOM. Les impulsions résultantes sont corrigées du *chirp* et à nouveau limitées par transformée de Fourier.

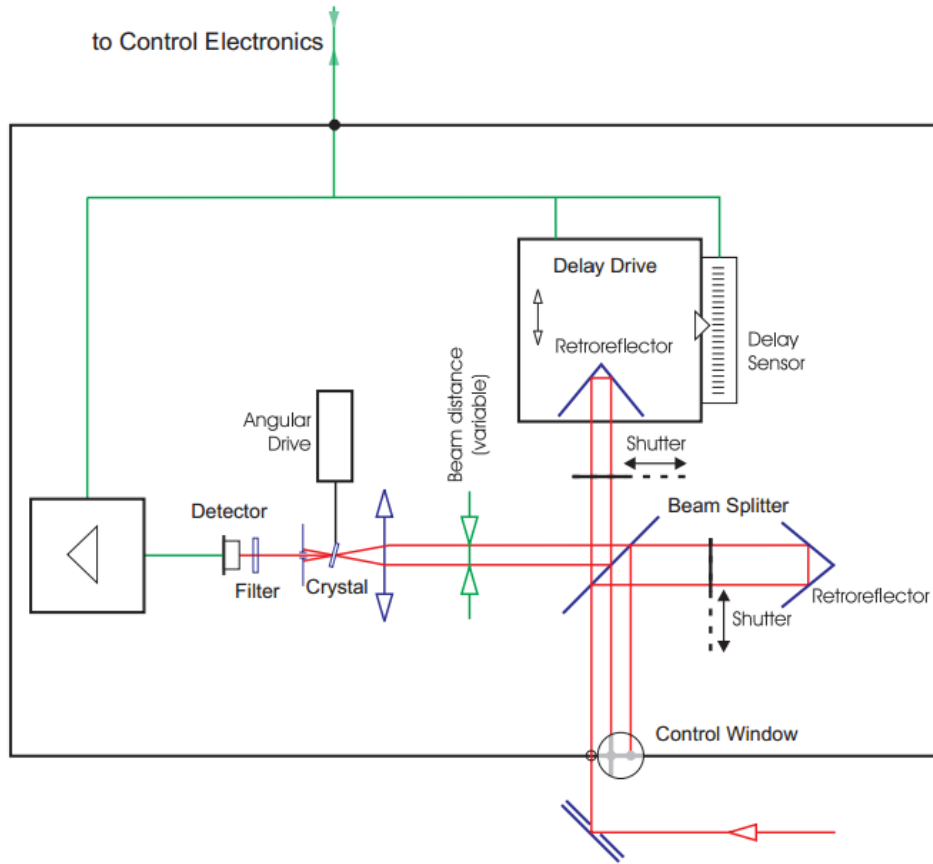


FIGURE 2.9 – Schéma de l'autocorrélateur d'intensité APE PulseCheck 50 (Angewandte Physik & Elektronik).

## 2.2.2 Excitation de l'échantillon

### 2.2.2.1 Couplage avec l'échantillon

Après le façonneur d'impulsion, le faisceau laser est diffracté par un diaphragme de diamètre  $50 \mu\text{m}$  puis filtré spatialement afin d'obtenir un mode spatial parfaitement gaussien. Le faisceau est ensuite divisé en trois par deux cubes séparateurs 30/70 et 50/50 afin de diviser la puissance incidente équitablement entre les trois faisceaux  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$ . Les fréquences de ces trois faisceaux sont ensuite modulées par des AOMs aux radio-fréquences  $\Omega_1$ ,  $\Omega_2$  et  $\Omega_3$ , dont nous détaillerons le principe dans la partie 2.2.3.2. A ce point précis, nous avons trois faisceaux  $\mathcal{E}_i$  modulés sur les fréquences  $\omega_0 + \Omega_i$  et un faisceau de référence  $\mathcal{E}_{Ref}$  de fréquence  $\omega_0$  sans modulation radio-fréquence. Deux lignes à retard motorisées<sup>4</sup> sont pilotées par CCDplot<sup>5</sup> pour contrôler le délai des faisceaux  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  par rapport à  $\mathcal{E}_3$  et  $\mathcal{E}_{Ref}$  avec une précision d'environ 10 fs. Une translation micrométrique permet d'ajuster le délai entre  $\mathcal{E}_{Ref}$  et  $\mathcal{E}_3$ . Les faisceaux  $\mathcal{E}_i$  sont ensuite recombinés dans le même mode spatial par un cube séparateur. La référence  $\mathcal{E}_{Ref}$  se propage dans un autre mode. Un télescope permet d'ajuster la taille du faisceau par rapport à la taille de la pupille d'entrée de l'objectif de microscope. Étant donné que nous mesurons la réflectivité du laser sur l'échantillon, l'excitation et la détection se propagent dans le même mode (voir figure 2.12 (a)).

4. Micos VT-80 et PLS85, contrôleur Corvus eco.

5. Logiciel LabWindows/CVI conçu par W. Langbein et B. Patton.

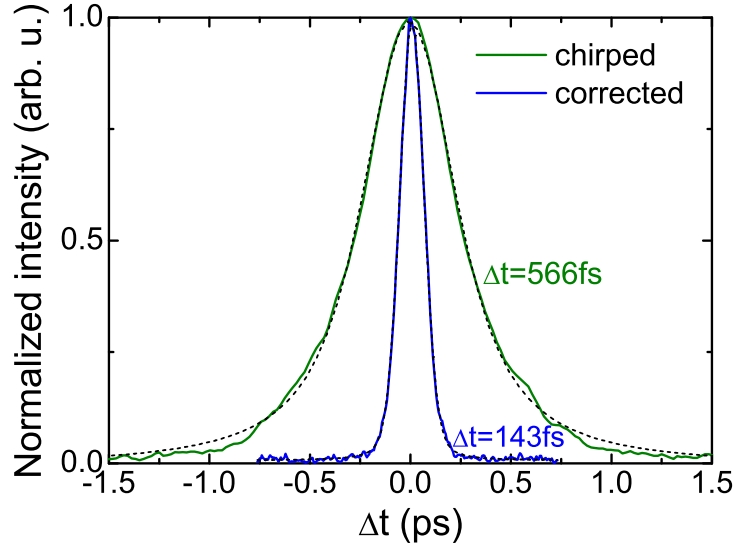


FIGURE 2.10 – **Mesure d'autocorrélation en intensité.** Les impulsions traversant un AOM (vert) présentent une largeur temporelle  $\Delta t = 566$  fs (FWHM). En corrigeant la *chirp* avec le façonneur (bleu), la largeur des impulsions redevient identique à celle du laser mesurée sur la figure 2.5 (b). Les traits pointillés noirs représentent les ajustements gaussiens permettant d'extraire les largeurs temporelles des impulsions (FWHM).

Pour coupler l'excitation à l'entrée de l'objectif et transmettre le maximum de signal, nous utilisons une lame séparatrice recouverte d'une couche anti-reflet sur un de ses cotés. La particularité de cette lame est de réfléchir 4% de l'intensité lumineuse à  $45^\circ$ . Par conséquent, 96% de la puissance d'excitation est perdue, mais cela n'est pas problématique car la puissance restante est largement suffisante pour exciter l'échantillon<sup>6</sup>. Grâce à cette lame séparatrice, la quasi-totalité du signal collecté par l'objectif est donc transmis.

Pour exciter et collecter la lumière émise par l'échantillon, nous utilisons un objectif de microscope optimisé pour transmettre le maximum de lumière dans le NIR<sup>7</sup>. Le pouvoir de résolution de l'objectif, c'est-à-dire la distance minimale qui doit séparer deux points contigus pour qu'ils soient correctement discernés par le système de mesure, est donné par l'équation suivante :

$$d_{min} = \frac{\lambda}{2 \text{NA}} \quad (2.13)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du laser et NA est l'ouverture numérique de l'objectif telle que :

$$\text{NA} = n \sin \alpha \quad (2.14)$$

où  $n$  représente l'indice de réfraction du milieu entre l'objectif et l'échantillon, et  $\alpha$  est le demi-angle du cône de lumière (voir figure 2.11). L'ouverture numérique permet donc de quantifier la capacité d'un objectif de microscope à collecter la lumière et à résoudre la taille d'un objet. Plus celle-ci est grande, plus la quantité de lumière collectée est importante et plus l'image de l'objet est résolue. L'ouverture numérique de notre objectif ( $\text{NA} = 0.65$ ), permet de résoudre un objet d'environ 700 nm pour une longueur d'onde  $\lambda = 900$  nm.

6. Une puissance totale de  $1 \mu\text{W}$  est suffisante pour générer le signal FWM.

7. Olympus LCPLN50XIR/0.65.

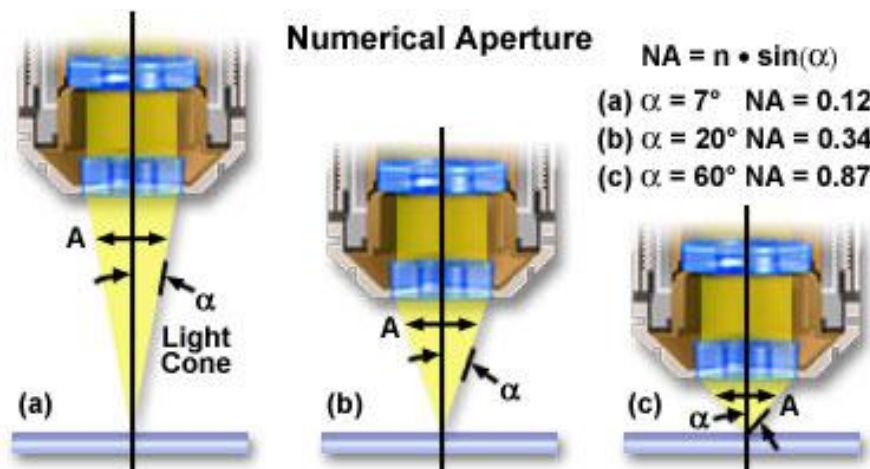


FIGURE 2.11 – Schéma d'un objectif de microscope pour trois ouvertures numériques (a)  $NA=0.12$ , (b)  $NA=0.34$  et (c)  $NA=0.87$ . (www.microscopyu.com)

### 2.2.2.2 Nanopositionnement et imagerie hyperspectrale

L'objectif de microscope est fixé sur des platines de translation piezo-électriques trois axes  $(x,y,z)$ <sup>8</sup> pilotées par CCDplot (voir figure 2.12 (a)). Un capteur capacitif fonctionnant en boucle fermée mesure et corrige la position des platines en temps réel. Cet asservissement supprime l'hystérésis des platines et permet de réaliser des images bidimensionnelles  $(x,y)$  de l'échantillon sur  $250 \times 250 \mu\text{m}^2$  avec une précision de 10 nm. Leur vitesse de déplacement est environ de  $100 \mu\text{m/s}$ . La figure 2.12 (b) montre un exemple typique d'imagerie hyperspectrale. Les points lumineux correspondent à la lumière émise par différentes BQs. L'axe  $z$  permet de focaliser le laser sur la surface de l'échantillon sur une plage de  $400 \mu\text{m}$ .

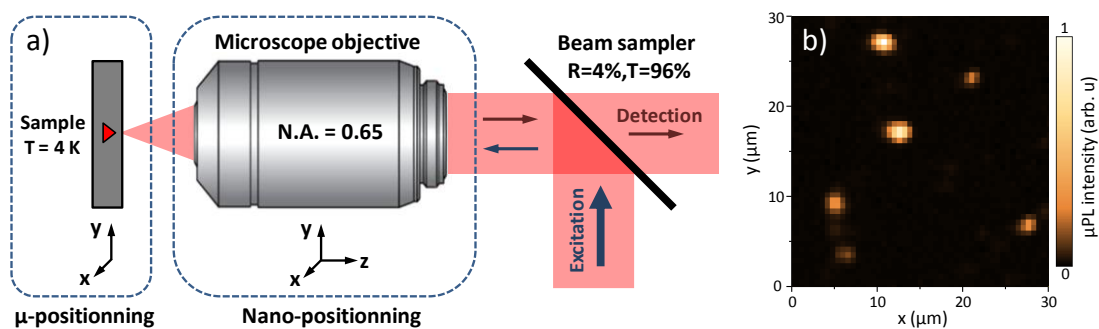


FIGURE 2.12 – **Dispositif d'imagerie confocale.** (a) Schéma de l'excitation de l'échantillon et de la collection du signal à travers l'objectif de microscope. (b) Exemple d'image hyperspectrale réalisée par microphotoluminescence ( $\mu\text{PL}$ ). Les points lumineux représentent l'émission de BQs individuelles. L'intensité de  $\mu\text{PL}$  est donnée par la barre de couleurs.

L'échantillon est placé dans un cryostat<sup>9</sup> refroidi par un flux continu d'hélium liquide, pour atteindre une température minimale  $T = 4.2 \text{ K}$  au niveau du porte-échantillon.

8. Physik Instrumente XY PIHERA et Z PIFOC. Implémentés dans CCDplot par Q. Mermillod.

9. CryoVac KONTI cryostat.

L'enceinte du cryostat est préalablement dépressurisée avec une pompe turbo-moléculaire pour obtenir un vide résiduel de  $10^{-6}$  mbar. Le porte-échantillon est fixé sur des platines de translation (x,y)<sup>10</sup>, permettant de déplacer l'échantillon sur une distance de 10 mm avec une précision de 50 nm. Ces platines servent principalement à repérer des zones sur l'échantillon.

### 2.2.3 Détection du signal

#### 2.2.3.1 Collection du signal

Juste après l'objectif de microscope, une lentille de distance focale  $f = 300$  mm, permet d'imager les taches focales des faisceaux  $\mathcal{E}_{Ref}$  et  $\mathcal{E}_S$  contenant la réflexion des faisceaux  $\mathcal{E}_i$  et le signal des BQs. Dans le plan focal de cette lentille, deux diaphragmes permettent de filtrer les anneaux d'Airy pour obtenir un mode spatial parfaitement gaussien (cf capture d'image sur la figure 2.4). Ce plan image permet également de vérifier la superposition du laser de  $\mu$ PL sur les faisceaux  $\mathcal{E}_i$  à la surface de l'échantillon. Une caméra de contrôle permet de visualiser ce plan focal. Les faisceaux sont ensuite focalisés dans l'AOM d'hétérodynage et imagés sur les fentes verticales du spectromètre<sup>11</sup>. Les faisceaux sont ensuite dispersés horizontalement par le réseau du spectromètre et collectés par une caméra CCD<sup>12</sup>. Lors d'une expérience résonante, le flux de photons envoyé sur la CCD est relativement élevé (quelques centaines de nanowatts), ce qui nécessite des temps d'intégration très courts. La CCD utilisée dispose de deux modes d'amplification, avec trois gains d'amplification pour chaque mode, et deux vitesses de lecture (100 kHz ou 2 MHz). Le mode *haute sensibilité* de la CCD permet d'amplifier un flux de photon très faible (250 ke-), tout en gardant un niveau de bruit très bas (3.5 e- rms). On l'utilise généralement pour les expériences non-résonantes pour amplifier les signaux faibles, comme lors d'une mesure de  $\mu$ PL d'une BQ. Le mode *haute capacité* permet d'amplifier un flux de photon très fort (1 Me-) avec un temps d'intégration court (1 ms). On utilise ce mode pour les expériences résonantes pour ne pas saturer la CCD, comme lors d'une mesure du signal FWM d'une BQ. Afin de réduire le bruit thermique lorsque le flux de photon est faible, les pixels de la CCD sont rétro-éclairés et refroidis à  $-80^\circ\text{C}$ . Enfin, une couche anti-reflet sur la surface des pixels permet de réduire les interférences Fabry-Perot, pour atteindre une efficacité quantique de détection d'environ 90 % dans le VIS-NIR.

#### 2.2.3.2 Hétérodynage optique

Les AOMs sont au cœur de la détection hétérodyne optique. Ils sont constitués d'un cristal de  $\text{TeO}_2$  fixé à un transducteur piezo-électrique produisant une onde acoustique propagatrice. L'onde acoustique générée par le transducteur produit des zones de compression et d'expansion dans le cristal, entraînant l'apparition d'une structure périodique dans l'indice de réfraction du cristal sur laquelle la lumière peut se diffracter (cf figure 2.13). L'angle de diffraction du faisceau incident est donnée par la relation de Bragg :

$$2\Lambda \sin \theta_i = n\lambda \quad (2.15)$$

où  $\Lambda$  est la longueur d'onde du son dans le cristal,  $\theta_i$  est l'angle du faisceau incident,  $n$  l'ordre de diffraction et  $\lambda$  la longueur d'onde du faisceau incident.

10. XY Micos MTS-70, contrôleur Corvus eco piloté par CCDplot.

11. Roper Scientific ACTON SP-2758i.

12. Roper Scientific PIXIS:400 coating eXcelon, pilotée par CCDplot.

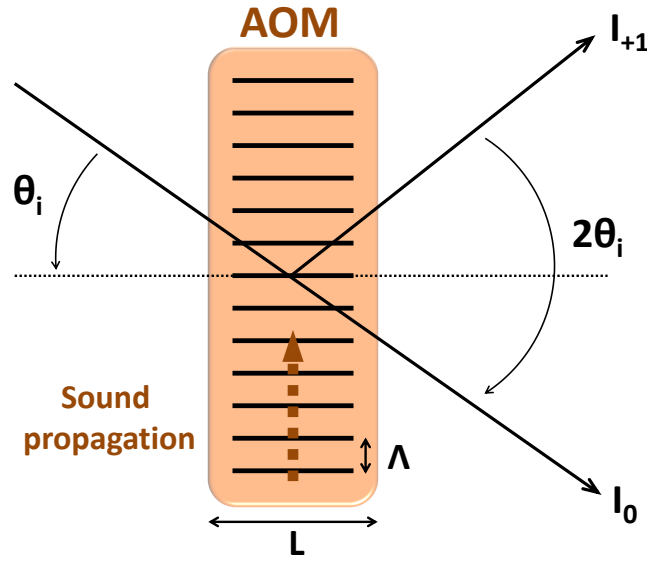


FIGURE 2.13 – Schéma de la diffraction de Bragg dans un AOM.  $\theta_i$  est l'angle du faisceau incident,  $I_0$  et  $I_{+1}$  sont respectivement les faisceaux d'ordre 0 (non diffracté) et d'ordre 1 (décalage positif de la fréquence),  $\Lambda$  est la longueur d'onde du son dans le cristal et  $L$  est la longueur d'interaction.

L'interaction de la lumière avec une onde acoustique propagatrice entraîne un décalage positif ou négatif (suivant l'ordre de diffraction) de la fréquence optique par effet Doppler. Pour un cristal  $\text{TeO}_2$ , le décalage fréquentiel est centré autour de 80 MHz, soit sept ordres de grandeur plus petit que la fréquence optique des impulsions ( $\omega_0/2\pi = 330$  THz). Ce décalage fréquentiel n'est pas mesurable par notre spectromètre.

La détection hétérodyne optique développée dans cette expérience est basée sur l'utilisation d'AOMs pour moduler la phase relative des trains d'impulsions optiques des trois faisceaux lasers  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  (illustré sur la figure 2.14).

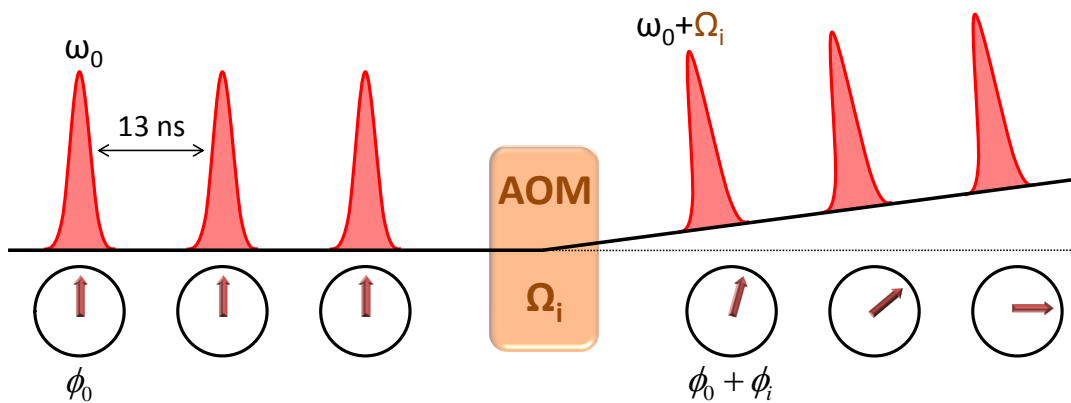


FIGURE 2.14 – Modulation de la phase relative d'un train d'impulsion. La fréquence optique  $\omega_0$  et la phase  $\phi_0$  du train d'impulsion sont modulées aux radio-fréquences  $\Omega_i$  et aux phases relatives  $\phi_i$  des AOMs  $i$ , telles que  $\Omega_{1,2,3}/2\pi = (80, 79, 80.77)$  MHz.

L'accumulation de phase entre chaque impulsion entraîne la modulation des faisceaux  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  sur les fréquences  $\omega_1 = \omega_0 + \Omega_1$ ,  $\omega_2 = \omega_0 + \Omega_2$  et  $\omega_3 = \omega_0 + \Omega_3$  respectivement, où  $\Omega_{1,2,3}/2\pi = (80, 79, 80.77)$  MHz sont les radio-fréquences des AOMs. Le temps entre

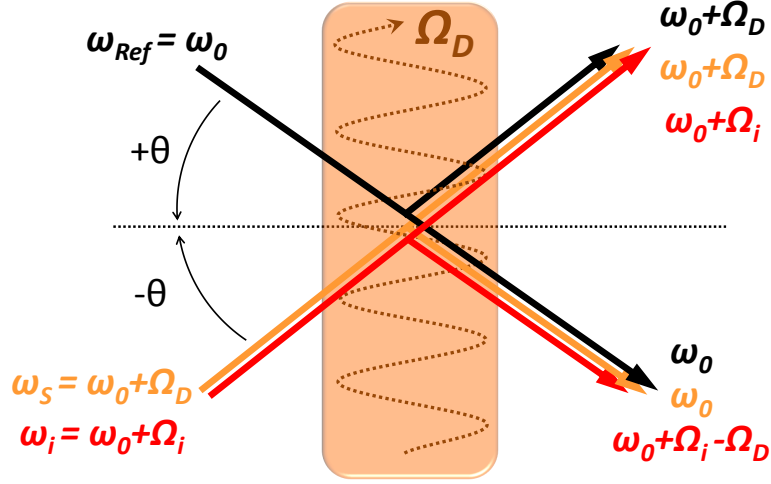


FIGURE 2.15 – Mélange des faisceaux dans l’AOM de démodulation synchronisé sur la fréquence de détection hétérodyne.

deux impulsions consécutives est donné par le taux de répétition du laser (76 MHz), soit environ 13 ns. Au cours d’une intégration de 10 ms,  $\approx 10^6$  impulsions modulées en phase interfèrent temporellement dans l’échantillon, générant localement un réseau temporel de densité, créé par  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ , oscillant à la fréquence  $\Omega_2 - \Omega_1$ . Le train d’impulsion  $\mathcal{E}_3$  est diffracté temporellement sur ce réseau, et génère la polarisation de troisième ordre suivante :

$$\mathcal{P}^{(3)} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{i(\omega_3 + \omega_2 - \omega_1)t} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3 e^{i(\omega_0 + \Omega_D)t} \quad (2.16)$$

Cette polarisation oscille à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_D$  où  $\Omega_D = \Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$  représente la fréquence de détection hétérodyne. En configuration deux faisceaux (FWM dégénéré),  $\mathcal{E}_2$  est auto-diffractée par le réseau de densité, et génère la polarisation de troisième ordre suivante :

$$\mathcal{P}^{(3)} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{i(2\omega_2 - \omega_1)t} = \chi^{(3)} \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2^2 e^{i(\omega_0 + \Omega_D)t} \quad (2.17)$$

Cette polarisation oscille également à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_D$  mais pour la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$ .

Le point crucial de la détection hétérodyne consiste à extraire le signal de l’excitation résonante. Le principe est le suivant : le signal, qui oscille à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_D$  et les faisceaux d’excitation, qui oscillent aux fréquences  $\omega_0 + \Omega_i$  sont *mélangés* avec une référence, qui oscille à la fréquence  $\omega_0$ , dans l’AOM de démodulation (voir figure 2.15), dont la modulation de fréquence correspond exactement à la fréquence hétérodyne  $\Omega_D$ . Les angles d’incidence des deux faisceaux par rapport à la normale correspondent aux angles de Bragg de l’AOM. La référence, dont l’angle d’incidence est  $+\theta$ , est diffractée temporellement de  $+\Omega_D$  par l’onde acoustique suivant l’ordre 1 de diffraction. Tandis que le signal et l’excitation, dont l’angle d’incidence est  $-\theta$ , sont diffractés temporellement de  $-\Omega_D$  suivant l’ordre -1 de diffraction. Ainsi, lorsque la référence est diffractée, le signal et l’excitation ne le sont pas, et vice versa. On obtient ainsi deux faisceaux contenant la référence, le signal et l’excitation, suivant les ordres +1 et -1 de diffraction. Suivant l’ordre 1, la référence et le signal oscillent à la même fréquence  $\omega_0 + \Omega_D$ , tandis que l’excitation oscille à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_i$ . Suivant l’ordre -1, la référence et le signal oscillent à la même fréquence  $\omega_0$ , tandis que l’excitation oscille à la fréquence  $\omega_0 + \Omega_i - \Omega_D$ . Cette différence de



fréquence de quelques MHz entre le signal et l'excitation, permet de rejeter le fond résonant de l'excitation en mesurant les interférences spectrales entre la référence et le signal (voir section 2.2.3.3).

Pour créer la fréquence hétérodyne, point clef de la détection hétérodyne, nous avons conçu un *mélangeur* analogique multi-fréquences<sup>13</sup> qui permet de générer la fréquence d'hétérodynage  $\Omega_D$  à partir des radio-fréquences  $\Omega_1$ ,  $\Omega_2$  et  $\Omega_3$  telle que  $\Omega_D = a\Omega_1 + b\Omega_2 + c\Omega_3$  où  $\{a, b, c\} \in \{\pm 3, \pm 2, \pm 1, 0\}$  sous la condition que  $a + b + c = 1$ . Le mélangeur de fréquence permet donc de générer 36 combinaisons de fréquence hétérodyne, ce qui constitue une évolution importante dans ce type d'expérience puisque la détection ne se limite plus à la fréquence FWM dégénérée  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Par exemple, il est désormais possible de détecter la fréquence FWM non-dégénérée  $\Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$  (voir chapitre 3), la fréquence SWM dégénérée  $2\Omega_3 + 2\Omega_2 - \Omega_1$  (voir chapitre 5), voire même la fréquence de *mélange à huit ondes* dégénérée  $3\Omega_3 + 3\Omega_2 - 2\Omega_1$ . La fréquence hétérodyne générée par le *mélangeur* est ensuite purifiée par un amplificateur *Lock-In*<sup>14</sup>, afin d'obtenir un niveau d'atténuation du bruit de  $-80$  dBm autour de la fréquence hétérodyne.

La figure 2.16 présente des mesures réalisées avec un analyseur de spectre, de la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$  après le mélangeur de fréquence (courbe bleue) et après le *Lock-In* (courbe rouge). Les pics latéraux générés par le mélangeur de fréquences sont filtrés par le *Lock-In* et le niveau de bruit est atténué de  $-20$  dBm pour atteindre une fréquence hétérodyne avec un niveau de bruit de  $-80$  dBm. Enfin, le signal de démodulation est envoyé sur un amplificateur radio-fréquence (30 dBm) permettant d'atteindre la puissance nécessaire (2 W) pour alimenter le transducteur piezo-électrique de l'AOM de démodulation.

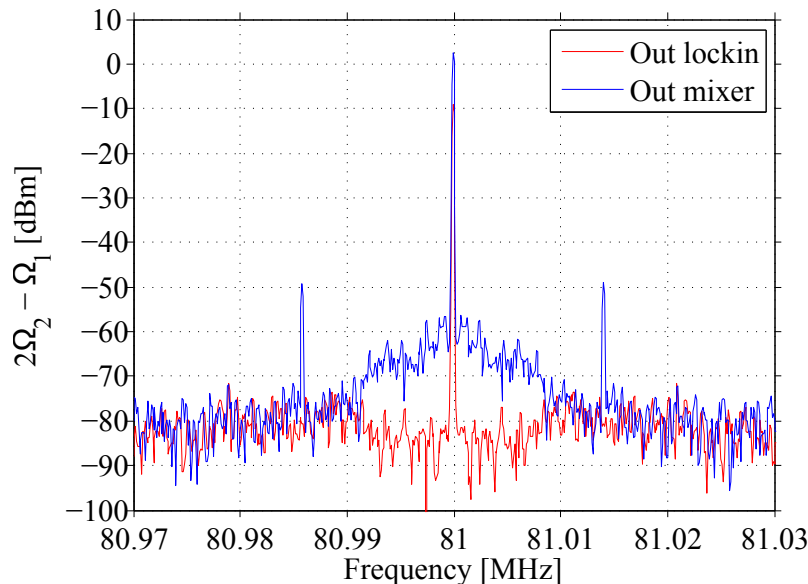


FIGURE 2.16 – Spectres de la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$  à la sortie du mélangeur de fréquence (bleu) et à la sortie de l'amplificateur *Lock-In* (rouge). Les deux pics de  $-50$  dBm correspondant à des fréquences harmoniques générées par le mélangeur de fréquence sont supprimées par le *Lock-In*, pour atteindre un niveau d'atténuation du bruit de  $-80$  dBm autour de la fréquence hétérodyne.

13. Réalisé à l'institut Néel par C. Hoarau, G. Nogues, J. Kasprzak et Q. Mermillod. Implémenté dans CCDplot par Q. Mermillod.

14. Stanford Research SR844.

### 2.2.3.3 Interférométrie spectrale

Dans cette partie, nous allons détailler la technique d'interférométrie spectrale par transformée de Fourier, permettant d'extraire à la fois l'amplitude et la phase relative de la polarisation non-linéaire [28, 29] en mesurant directement le champ électrique  $\mathcal{E}_S$  du signal FWM. La combinaison de cette technique avec la détection hétérodyne optique est appelée *interférométrie spectrale hétérodyne* (HSI) [30, 31]. Cette technique est basée sur la mesure de l'amplitude des interférences spectrales entre le signal  $E_S(\omega)$  et une référence  $E_{Ref}(\omega, \tau)$  oscillant à la fréquence optique  $\omega = \omega_0$  et fixée à un délai  $\tau$  du signal. Le signal d'interférence  $S(\omega, \tau)$  mesuré par la CCD est donc proportionnel à la somme quadratique des deux champs électriques :

$$\begin{aligned} S(\omega, \tau) &= |E_{Ref}(\omega, \tau) + E_S(\omega)|^2 \\ &= |E_{Ref}(\omega, \tau)|^2 + |E_S(\omega)|^2 + 2\Re E_{Ref}^*(\omega, \tau)E_S(\omega) \end{aligned} \quad (2.18)$$

Les deux premiers termes, qui correspondent respectivement à l'intensité de la référence et du signal, ne contiennent pas d'information sur l'amplitude et la phase du signal et constituent un fond résonant. Il est possible de les soustraire pour ne garder que les termes d'interférences  $2\Re E_{Ref}^*(\omega, \tau)E_S(\omega)$  (voir partie 2.2.3.4). En supprimant ces termes linéaires, et en posant  $E_{Ref}(\omega, \tau) = E_{Ref}(\omega)e^{-i\omega\tau}$ , on trouve :

$$S(\omega, \tau) = 2\Re f(\omega)e^{i\omega\tau} \quad (2.19)$$

où  $f(\omega) = E_{Ref}^*(\omega)E_S(\omega)$ . Comme le signal mesuré  $S(\omega, \tau)$  est réel, i.e. la somme de  $f(\omega)\exp(i\omega\tau)$  et son complexe conjugué, la transformée de Fourier inverse de  $S(\omega, \tau)$  est la somme de deux termes inversés dans le temps l'un par rapport à l'autre :

$$\mathcal{F}^{-1}S(\omega, \tau) = f(t - \tau) + f(-t - \tau) \quad (2.20)$$

où  $f(t)$  est le produit de corrélation entre la référence et le champ électrique mesuré. Étant donné qu'aucun signal n'est émis avant l'excitation de l'échantillon, i.e. pour des temps inférieurs à  $\tau$ , le terme  $f(-t - \tau)$  est donc nul selon le principe de causalité. Nous appliquons donc une fonction de Heaviside  $H(t)$  dans le domaine temporel pour ne garder que le terme positif  $f(t - \tau)$ . Finalement, l'amplitude et la phase du champ électrique complexe du signal sont obtenues par la transformée de Fourier de l'équation 2.20 pour les temps positifs :

$$E_S(\omega) = \frac{\mathcal{F}[H(t)\mathcal{F}^{-1}S(\omega, \tau)]e^{-i\omega\tau}}{E_{Ref}^*(\omega, \tau)} \quad (2.21)$$

### 2.2.3.4 Détection balancée

Pour extraire les termes d'interférences et atteindre le *shot noise*<sup>15</sup> de la CCD, une astuce consiste à utiliser une détection balancée. Cette technique de détection consiste à inverser périodiquement de 180° la phase du signal électrique envoyée à l'AOM de démodulation à chaque intégration (voir la figure 2.17 (b)). La phase des interférences entre le signal et la référence est donc inversée de  $\pi$  à chaque intégration. Ainsi, en soustrayant deux intégrations consécutives, les termes d'interférences s'additionnent et les termes linéaires se soustraient :

$$\begin{aligned} S(\omega, \tau) &= S_+(\omega, \tau) - S_-(\omega, \tau) \\ &= 4\Re E_{Ref}^*(\omega, \tau)E_S(\omega) \end{aligned} \quad (2.22)$$

15. Bruit électronique de la CCD tel que  $\text{SNR} \propto \sqrt{N}$  où  $N$  est le nombre de photo-électrons.

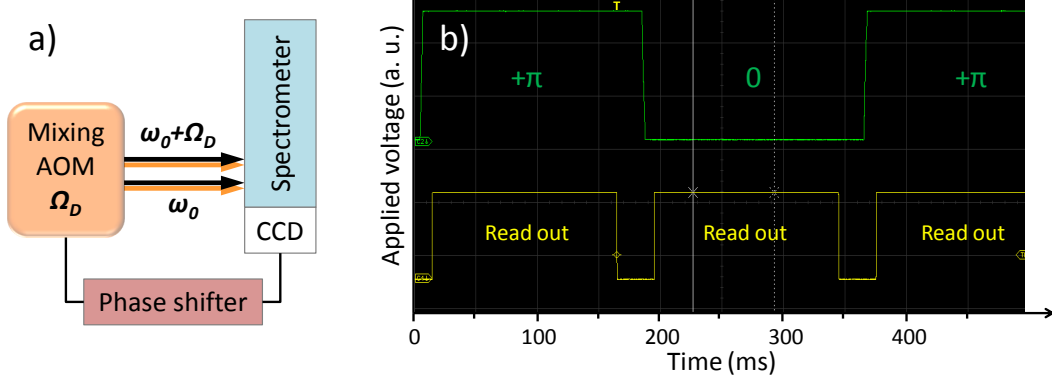


FIGURE 2.17 – Synchronisation du décalage de phase (en vert) avec le temps de lecture de la caméra (en jaune) pour un temps d'intégration de 150 ms.

avec :

$$S_{\pm}(\omega, \tau) = |E_{Ref}(\omega, \tau)|^2 + |E_S(\omega)|^2 \pm 2\Re E_{Ref}^*(\omega, \tau)E_S(\omega) \quad (2.23)$$

Dans notre cas, nous utilisons une détection balancée double, basée sur la soustraction de deux régions de la CCD. Cela nécessite de fonctionner dans le régime de réponse linéaire de la CCD ( $\leq 5 \times 10^4$  coups/intégration). Il est donc essentiel d'ajuster le temps d'intégration et l'amplification avant chaque acquisition pour ne pas saturer la CCD. Cette détection nécessite également d'équilibrer la puissance de la référence par rapport aux faisceaux d'excitation  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  pour que les deux régions de la CCD reçoivent la même intensité.

À la sortie de l'AOM de démodulation (voir la figure 2.17 (a)), la référence et le signal sont *mélangés* dans deux faisceaux colinéaires séparés verticalement, oscillant aux fréquences optiques  $\omega_0 + \Omega_D$  et  $\omega_0$ . Ces deux faisceaux sont dispersés horizontalement par le réseau du spectromètre et intégrés sur deux régions verticalement séparées de la CCD. La figure 2.18 (a) montre un exemple de franges d'interférences spectrales entre la référence et  $\mathcal{E}_1$  sur la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = \Omega_1$ , pour  $\tau = 2$  ps. Les pixels de ces deux régions sont ensuite regroupés verticalement, afin de pouvoir réaliser des opérations algébriques entre les deux régions de la CCD (cf figure 2.18 (b)). Pour que la différence de phase entre les deux régions soit exactement  $\pi$  et pour que les franges d'interférences soient parfaitement verticales avant le regroupement, il est crucial que les angles d'incidences des faisceaux correspondent aux angles de Bragg de l'AOM de démodulation ( $\theta_{Ref} = -\theta_S$ ). Un bon alignement permet d'atteindre un contraste de franges d'interférences proche de 90 % (cf figure 2.18 (c)). Dans la pratique, nous optimisons systématiquement le contraste des franges entre les trois faisceaux  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  avec le faisceau référence, en optimisant le recouvrement des faisceaux diffractés par l'AOM. Cette alignement est primordial car l'amplitude finale du signal dépend du contraste de ces franges.

On appelle A et B, les deux régions de la CCD. Pour  $N$  acquisitions on a donc :

$$N \times \begin{cases} I_{A,B}^0 \\ I_{A,B}^\pi \end{cases} \quad (2.24)$$

où  $I_{A,B}^\pi$  et  $I_{A,B}^0$  représentent respectivement les interférences avec et sans décalage de phase pour les deux régions de la CCD. La figure 2.19 (a) montre le résultat d'une acquisition correspondant à un décalage de phase. Pour chaque région, on obtient une paire

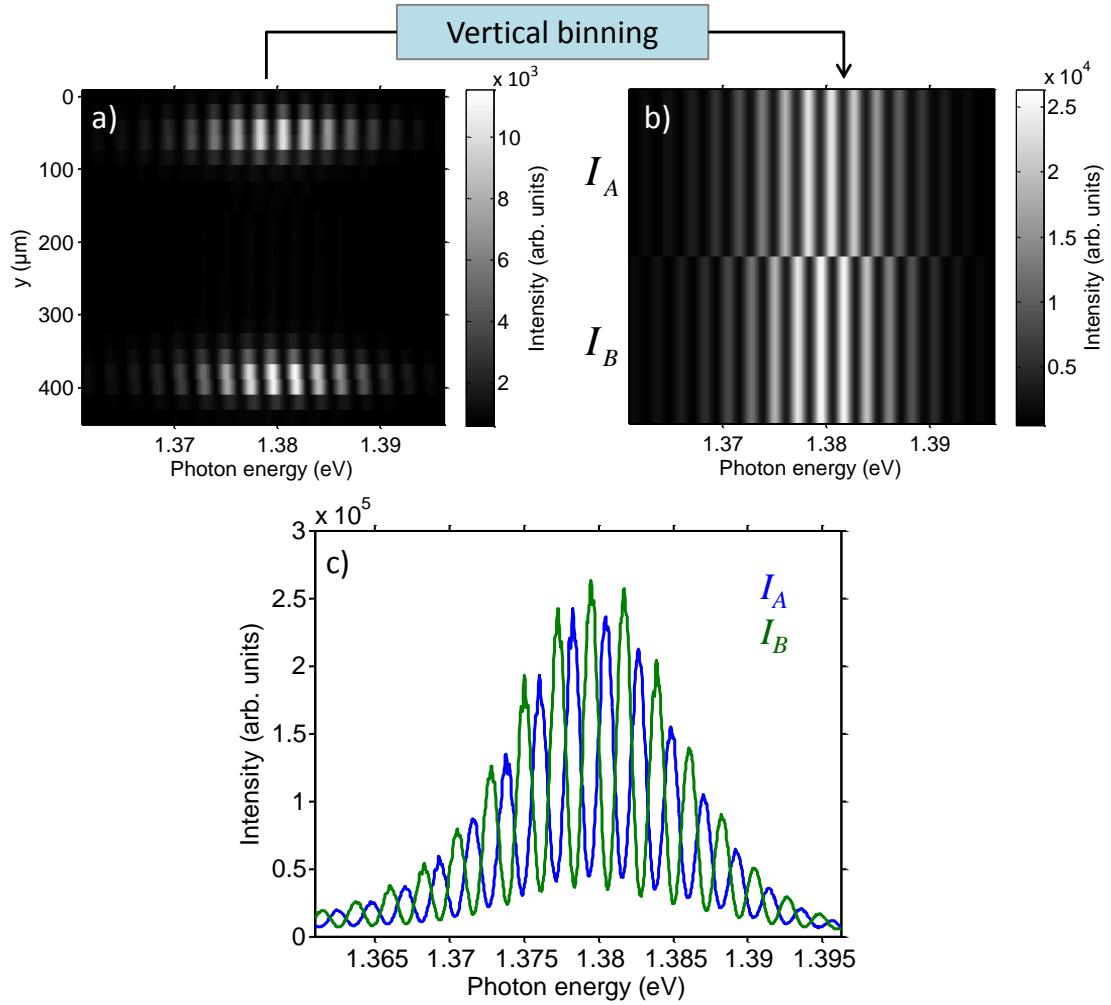


FIGURE 2.18 – Interférences spectrales entre la référence et  $\mathcal{E}_1$  sur la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = \Omega_1$  avec  $\tau = 2$  ps, pour un temps d’intégration de 20 ms en mode *haute capacité* gain 1, réseau 1200 traits/mm. (a) Interférences spectrales mesurées sur la CCD. (b) Régions  $I_A$  et  $I_B$  de la CCD après le regroupement vertical des pixels. (c) Intensité des interférences spectrales des deux régions de la CCD. Le contraste des franges d’interférences est proche de 90 %.

d’interférences  $\{I^0, I^\pi\}$ . Une routine appelée *pair diff* [30], permet ensuite de soustraire chaque paire de la manière suivante :

$$\Delta I_{A,n}(\omega) = \sqrt{\frac{C_{B,n}}{C_{A,n}}} [I_{A,n}^0(\omega) - I_{A,n}^\pi(\omega)] \quad (2.25)$$

$$\Delta I_{B,n}(\omega) = \sqrt{\frac{C_{A,n}}{C_{B,n}}} [I_{B,n}^0(\omega) - I_{B,n}^\pi(\omega)] \quad (2.26)$$

où  $n$  est l’indice du nombre d’acquisition (ou nombre de paires) et  $C_{A,n}$  et  $C_{B,n}$  sont des coefficients corrigeant les fluctuations d’intensité entre les deux régions A et B de la

CCD tels que :

$$C_{A,n} = \int [I_{A,n}^0(\omega) + I_{A,n}^\pi(\omega)] d\omega - 2 \int D_A(\omega) d\omega \quad (2.27)$$

$$C_{B,n} = \int [I_{B,n}^0(\omega) + I_{B,n}^\pi(\omega)] d\omega - 2 \int D_B(\omega) d\omega \quad (2.28)$$

où  $D_{A,B}(\omega)$  est le bruit thermique des régions A et B de la CCD. Enfin, la dernière étape de la routine consiste à soustraire les deux régions de la CCD, on obtient alors :

$$\Delta I_n(\omega) = \Delta I_{A,n}(\omega) - \Delta I_{B,n}(\omega) \quad (2.29)$$

Le résultat de cette opération est illustré sur les figures 2.19 (b,c). Le signal contient désormais uniquement le terme d'interférence de l'équation 2.22, sans bruit thermique et sans fond résonant. Comme attendu, en comparant les figures 2.18 (c) et 2.19 (c), l'intensité des franges d'interférences est quatre fois plus grande après la détection balancée (deux fois en amplitude).

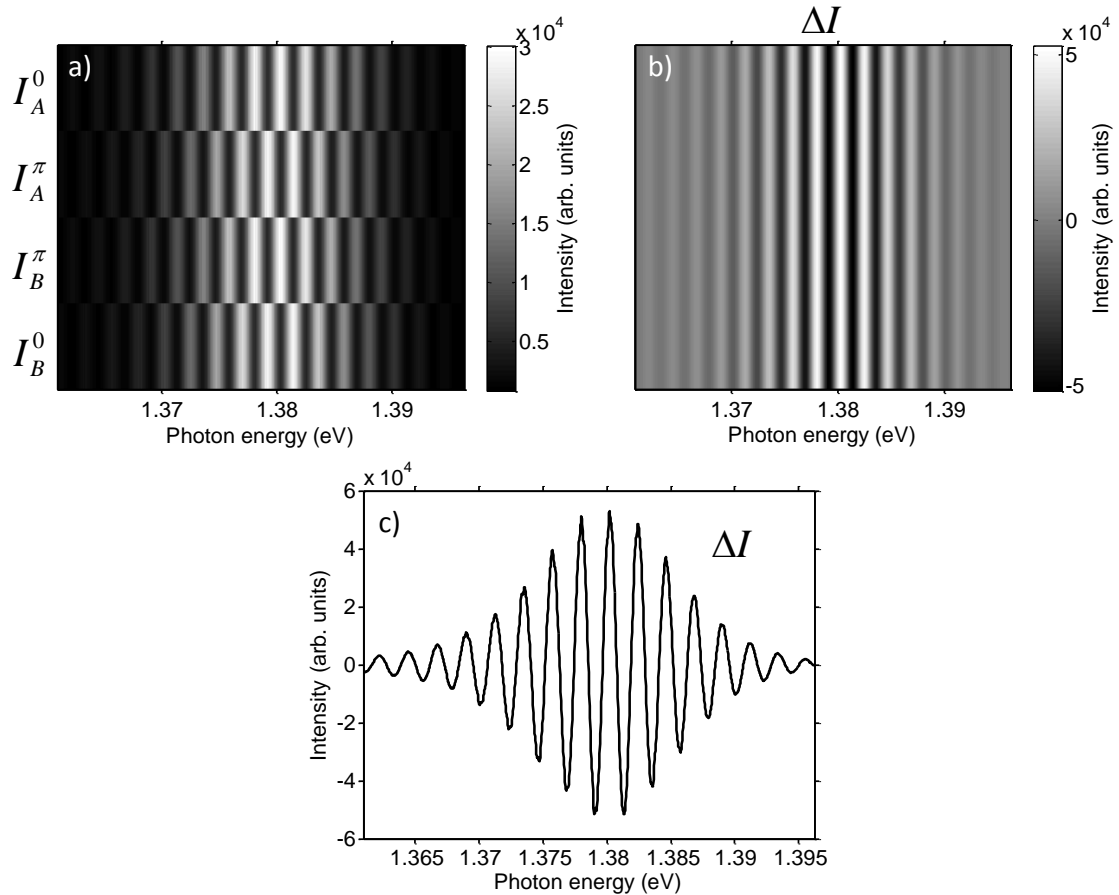


FIGURE 2.19 – Étapes de la routine d'acquisition. (a) Franges d'interférences présentées sur la figure 2.18 au cours d'une acquisition correspondant à deux intégrations successives avec un décalage de phase de  $\pi$ . Les deux régions de la CCD comportent donc une paire de franges d'interférences  $\{I_{A,B}^0, I_{A,B}^\pi\}$ . (b) Franges d'interférences  $\Delta I(\omega)$  après la routine *pair diff.* (c) Intensité des franges d'interférences  $\Delta I(\omega)$ .

Ce signal est ensuite corrigé par la référence puis convertie dans le domaine temporel par une transformée de Fourier rapide (FFT) :

$$S_n(t) = F \left( \frac{\Delta I'_n(\omega)}{\sqrt{I_{n,Ref}(\omega)}} \right) \quad (2.30)$$

où  $\Delta I'_n(\omega)$  résulte d'une interpolation linéaire et d'un sur-échantillonnage de  $\Delta I_n(\omega)$  pour générer 2048 points nécessaires pour calculer la FFT, à partir des 1340 points donnés par le nombre de pixels horizontaux de la CCD. Comme nous l'avons vu précédemment (cf équation 2.20), le signal  $S_n(t)$  résultant de cette opération contient à la fois un terme pour les temps positifs et négatifs. Pour filtrer le signal aux temps négatifs, nous utilisons une fonction erreur afin de couper de manière douce le signal temporel. Cela permet d'éviter l'apparition de pics satellites dans le signal fréquentiel causé par à une coupure brutale du signal temporel. Finalement, nous calculons la transformée de Fourier inverse  $S_n(\omega)$ , comprenant à la fois l'amplitude et la phase du champ électrique du signal mesuré pour les  $n$  acquisitions. La dernière étape consiste à sommer toutes les acquisitions pour obtenir le spectre d'interférence final.

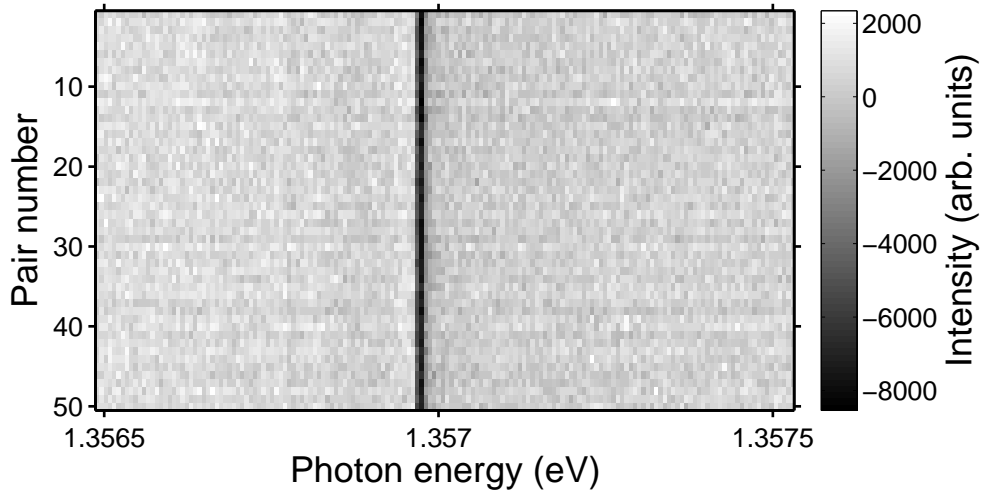


FIGURE 2.20 – Exemple de signal d'interférence d'une transition excitonique à  $T = 4$  K sur la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$ , pour 1000 acquisitions successives de 5 ms regroupées dans 50 paires, réseau 1800 traits/mm. Le temps d'intégration total est de 20 secondes. La phase du signal d'interférence est stable durant l'acquisition et ne nécessite pas de correction de phase.

Avant de réaliser la sommation de toutes les acquisitions, il est important de vérifier la stabilité de la phase des interférences entre chaque acquisition. En effet, un courant d'air dans le chemin optique d'un faisceau ou une vibration mécanique d'un élément optique peut entraîner des variations de phase entre les faisceaux, pouvant brouiller totalement les interférences spectrales entre le signal et la référence. Pour minimiser les fluctuations de phase au cours de l'acquisition, nous avons stabilisé passivement le dispositif expérimental. Nous utilisons une table optique pneumatique pour atténuer les vibrations mécaniques extérieures, le dispositif expérimental est recouvert intégralement par un capot hermétique pour éviter les courants d'air entre les faisceaux et la température de la salle d'expérience est régulée par une climatisation. On peut juger de la qualité de cette stabilisation passive en regardant le signal d'interférence d'une transition excitonique présentée sur la

figure 2.20, obtenue pour 1000 acquisitions successives de 5 ms regroupées dans 50 paires. Si toutefois cela ne suffit pas, une routine de correction de phase nous permet de corriger artificiellement les fluctuations de phase. Les détails de cette routine sont donnés pages 63-64 de la référence [30].

La figure 2.21 (a) illustre un exemple de spectre d'interférences après la sommation des acquisitions, obtenues sur un échantillon contenant des BQs InAs/GaAs. Le spectre de réflectivité de la référence est représenté en bleu. En faisant interférer la référence avec le signal FWM sur la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$ , nous observons l'apparition de pics dans l'interférogramme (en noir) correspondant à des transitions excitoniques. L'information sur l'amplitude et la phase relative de chaque transition est contenue dans cet interférogramme. En effectuant l'analyse de Fourier précédemment décrite, l'amplitude (en rouge) et la phase (en vert) du signal  $S(\omega)$  sont extraites pour chaque transition (cf figure 2.21 (b)).

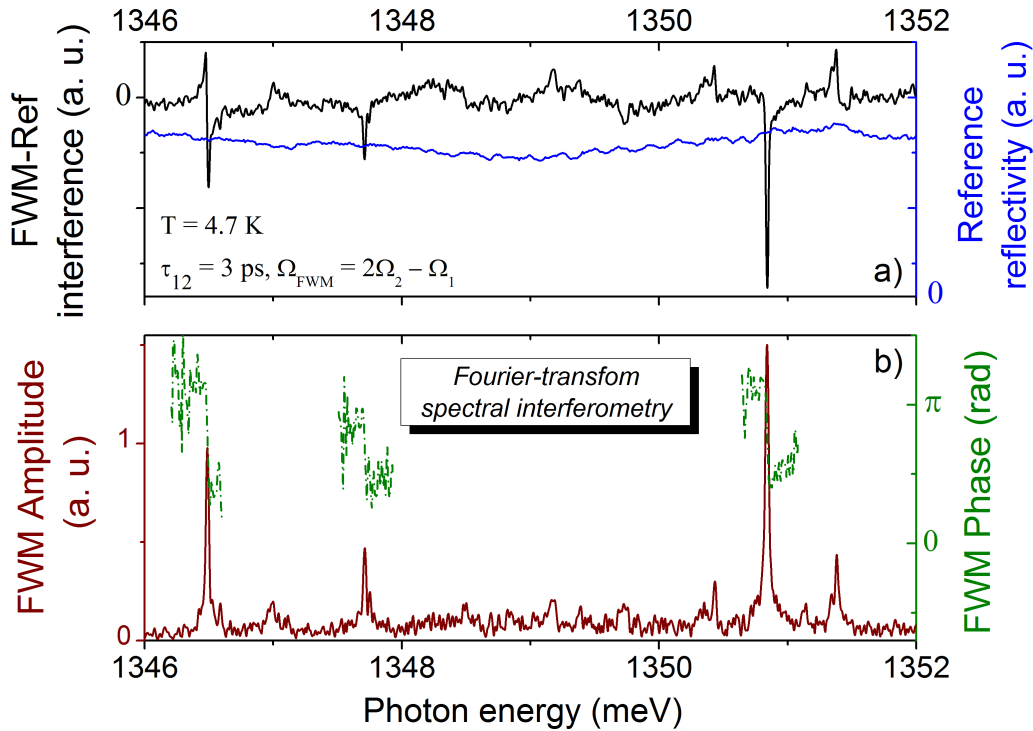


FIGURE 2.21 – Exemple de spectre FWM mesuré par interférométrie spectrale hétérodyne de BQs InAs/GaAs dans une microcavité plane. (a) Interférences spectrales du signal FWM (noir) pour  $\tau_{12} = 3$  ps à la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = 2\Omega_2 - \Omega_1$ . Le spectre de réflectivité de la référence est représenté en bleu. (b) Amplitude (rouge) et phase (vert) du signal FWM extrait par FFT du signal d'interférence. Chaque pic représente une transition excitonique.

### 2.2.3.5 Réponse temporelle du spectromètre

La gamme spectrale d'un spectromètre est définie par la dispersion spectrale de son réseau et par sa distance focale. Notre spectromètre dispose d'une distance focale de 75 cm et de trois réseaux de diffraction : 600, 1200 et 1800 traits/mm, avec des dispersions spectrales à 900 nm de 2.056, 0.858 et 0.357 nm/mm respectivement. Les résolutions spectrales par pixel pour ces trois réseaux sont respectivement 0.041, 0.017 et 0.007 nm. Connaissant le nombre de pixels de la caméra, à savoir 1340 pixels dans le plan de diffraction des ré-

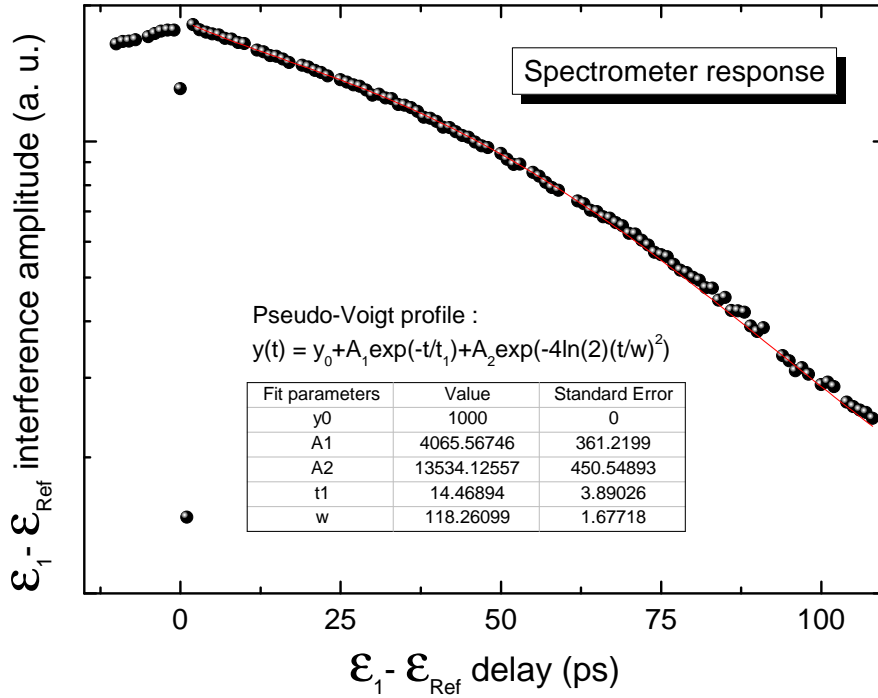


FIGURE 2.22 – Réponse temporelle du spectromètre pour le réseau 1800 traits/mm à 902 nm. Évolution de l’amplitude des franges d’interférences entre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_{Ref}$  à la fréquence hétérodyne  $\Omega_D = \Omega_1$  en fonction du délai  $\mathcal{E}_1 - \mathcal{E}_{Ref}$ . La réponse temporelle du spectromètre suit un profil de Pseudo-Voigt (trait rouge).

seaux, on trouve ainsi la gamme spectrale pour chaque réseau, soit 54.94, 22.78 et 9.38 nm respectivement. Temporellement, la résolution spectrale d’un spectromètre se traduit par une réponse temporelle caractéristique pour chaque réseau de diffraction. Un moyen pour caractériser cette réponse est de mesurer l’amplitude des franges d’interférences entre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_{Ref}$  sur la fréquence hétérodyne  $\Omega_1$  en fonction du délai  $\mathcal{E}_1 - \mathcal{E}_{Ref}$ . La figure 2.22 montre le résultat de cette mesure pour le réseau 1800 traits/mm à 902 nm. La réponse temporelle de notre spectromètre suit un profil de Pseudo-Voigt<sup>16</sup> suivant :

$$y(t) = y_0 + A_1 e^{-\frac{t}{t_1}} + A_2 e^{-4 \ln(2) \left(\frac{t}{w}\right)^2} \quad (2.31)$$

où  $y_0$  est un *offset* et  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $t_1$  et  $w$  sont respectivement des coefficients de pondération et des constantes de temps des fonctions lorentzienne et gaussienne.

Intrinsèque au spectromètre, il n’est pas possible de se débarrasser de cet élargissement artificiel durant la mesure dans la configuration actuelle. Pour corriger le signal de cet élargissement, nous déconvoluons la réponse temporelle du spectromètre donnée par l’équation 2.31 à la réponse temporelle du signal donnée par l’équation 2.20 sur une fenêtre temporelle de 200 ps. Cette correction est particulièrement importante lors de la mesure de processus incohérent, quand la largeur de la distribution gaussienne est comparable à la fenêtre temporelle du spectromètre, comme par exemple lors de la mesure d’un écho de photon engendré par les fluctuations spectrales inhomogènes d’une raie excitonique (voir la partie 3.2.2).

16. Une fonction de Pseudo-Voigt est l’approximation d’une fonction de Voigt, utilisant une combinaison linéaire des fonctions gaussienne et lorentzienne plutôt que leur produit de convolution.



## 2.3 Échantillons : Microcavités optiques planaires

Cette partie décrit le type d'échantillon utilisé dans le but d'exciter le plus efficacement et d'extraire le maximum de lumière provenant d'un émetteur unique tel qu'une BQ InAs/GaAs. Une partie du laser d'excitation est réfléchi sur la surface de l'échantillon, et constitue un bruit de fond important :

$$R = \left( \frac{n-1}{n+1} \right)^2 \approx 30 \% \quad (2.32)$$

où  $n \approx 3.5$  est l'indice de GaAs à 900 nm. De plus, les réflexions totales internes à l'interface GaAs/air limitent la collection de la lumière provenant de la BQ. Avec un objectif de microscope d'ouverture numérique  $NA=0.65$ , seulement 2 % de la lumière émise par la BQ sont collectés. Une solution pour pallier à ces deux problèmes à la fois consiste à insérer la BQ dans une nanostructure photonique telle qu'une microcavité (MC) optique, comme le montre schématiquement la figure 2.23. Nous allons voir qu'il est possible de réduire la puissance d'excitation incidente en amplifiant le champ intra-cavité ressenti par la BQ, et d'obtenir une efficacité de collection de la lumière émise par ce dernier jusqu'à 42 %.

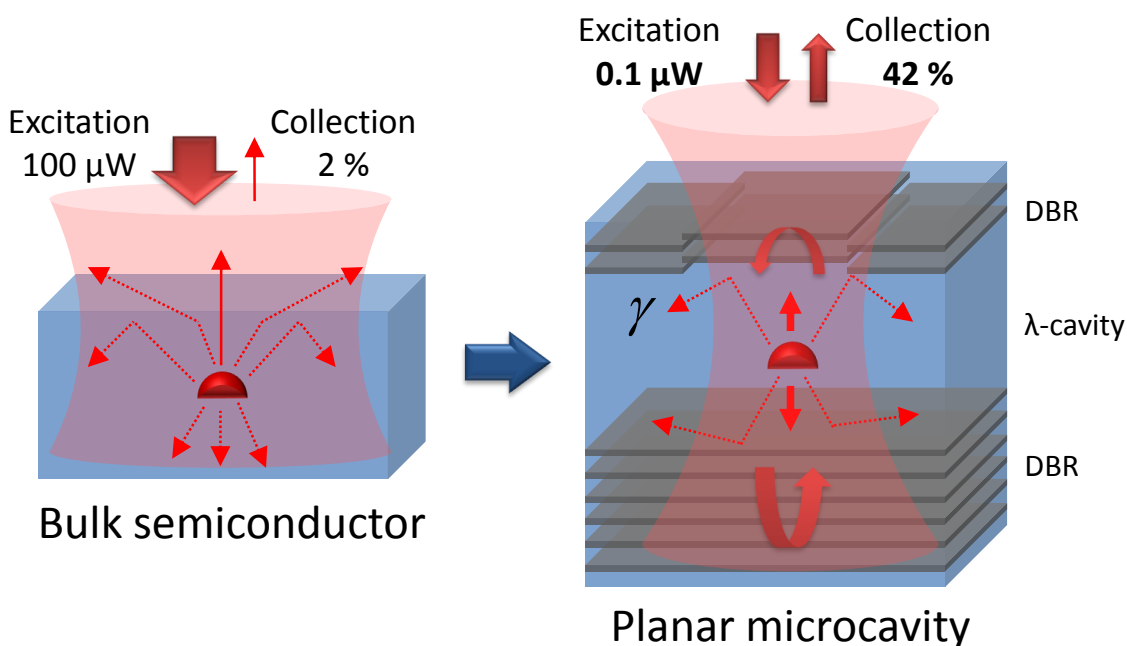


FIGURE 2.23 – Représentation schématique de l'excitation et de la collection de la lumière provenant d'une BQ dans un échantillon massif (gauche) et dans une microcavité planaire en présence d'un défaut photonique dans le miroir de Bragg diélectrique (droite).

### 2.3.1 Confinement de la lumière dans une microcavité optique

L'émission spontanée d'un  $2\mathcal{LS}$  résulte de la désexcitation radiative de l'état excité vers l'état fondamental. En régime de *couplage faible*, l'émetteur est couplé à un quasi-continuum de mode. Son taux d'émission spontanée est alors donné par la règle d'or de Fermi qui décrit la probabilité de transition entre l'état excité à zéro photon  $|e, 0\rangle$  et l'état

fondamental à un photon  $|g, 1\rangle$  telle que :

$$\Gamma = \frac{1}{\tau} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle e, 0 | H_I | g, 1 \rangle|^2 \rho(\omega) \quad (2.33)$$

où  $\tau$  est le temps de vie de l'émetteur. Dans l'approximation dipolaire, l'Hamiltonien d'interaction entre le champ  $\mathcal{E}$  et le moment dipolaire  $\mu$  du  $2\mathcal{LS}$  s'écrit  $H_I = \vec{\mu} \cdot \vec{E}$ . La densité d'états  $\rho(\omega)$  décrit le couplage de l'émetteur avec le continuum de mode de la cavité :

$$\rho(\omega) = \frac{2Q}{\pi \hbar \omega_0 \left[ 1 + 4Q^2 \left( \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} \right)^2 \right]} \quad (2.34)$$

où  $\omega_0$  est la fréquence de résonance de la cavité et  $Q$  est le facteur de qualité de la cavité tel que :

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega} \quad (2.35)$$

où  $\Delta\omega$  est la largeur spectrale du mode de la cavité. Le facteur de qualité traduit la capacité à stocker l'énergie dans la cavité, c'est-à-dire le nombre d'oscillations que peut faire un photon avant de quitter la cavité. Plus le mode de cavité est fin spectralement, plus le temps de vie du photon dans la cavité est grand  $\tau_c = 1/\Delta\omega$ . Dans le régime de couplage faible, le temps de vie du photon dans la cavité est bien plus petit que le temps de vie radiatif de l'émetteur.

Le rapport entre les taux d'émission spontanée d'un émetteur couplé à un mode de cavité  $\Gamma$  et dans le vide  $\Gamma_0$  définit le facteur de Purcell :

$$F_p = \frac{\Gamma}{\Gamma_0} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q\lambda^3}{V} \quad (2.36)$$

où  $V$  représente le volume modal qu'occupe le champ dans la cavité. Lorsque le facteur de qualité de la cavité est grand, et que le mode est fortement confiné, le taux d'émission spontanée de l'émetteur est exalté du facteur de Purcell.

L'efficacité de collection de l'émission spontanée d'un émetteur en cavité est donnée par le facteur de mérite  $\beta$  suivant :

$$\beta = \frac{F_p}{F_p + \gamma_p} \quad (2.37)$$

où  $\gamma_p$  représente les pertes de la cavité. Lorsque  $F_p$  est très grand devant  $\gamma_p$ , la quasi-totalité des photons de l'émission spontanée sont émis dans le mode de la cavité.

Notons que la validité de ce modèle repose sur trois hypothèses : l'émetteur doit être localisé à un ventre du mode confiné, l'orientation du dipôle doit être parallèle au champ électrique et la fréquence de résonance de la cavité doit être identique à celle de l'émetteur.

### 2.3.2 Description des échantillons

Les MCs optiques utilisées pour les expériences présentées dans les chapitres 3, 4 et 5 ont été réalisées par C. Schneider, M. Kamp et S. Höfling au centre de recherche pour les systèmes de matériaux complexes Wilhelm Conrad Röntgen de l'Université de Würzburg en Allemagne [40]. Réalisées par MBE, ces MCs contiennent des BQs InAs/GaAs fortement confinées de type SK. La figure 2.24 (b) présente une image MEB des BQs InAs avant la

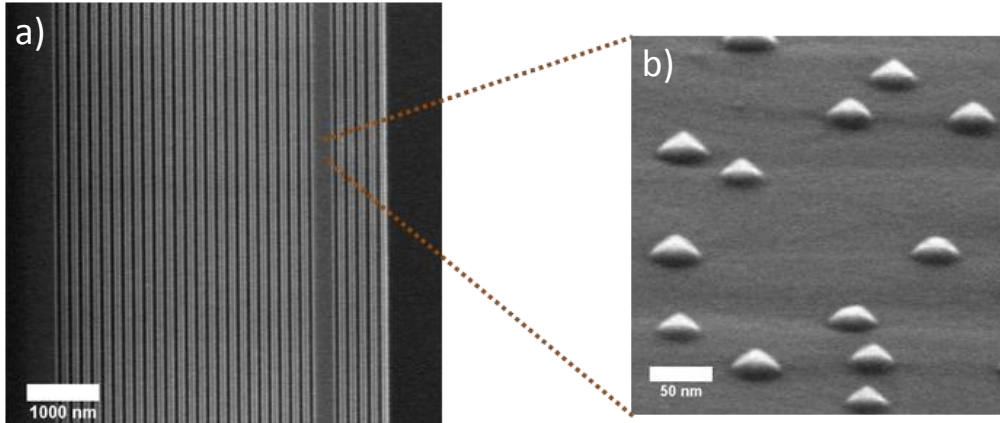


FIGURE 2.24 – a) Vue en coupe d'une image MEB de la MC composée de 5 (18) paires de miroirs de Bragg supérieurs (inférieurs). b) Zoom sur la couche de mouillage où l'on aperçoit les BQs InAs (Université de Würzburg).

croissance de la couche supérieure de GaAs. La densité de BQs est de  $2.2 \times 10^9 \text{ cm}^{-2}$ . Pour assurer la diffusion des électrons vers les BQs, un  $\delta$ -dopage négatif de la couche de mouillage par du silicium a été réalisé avec une densité de  $1.8 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . Les MCs optiques sont basées sur l'utilisation de miroirs de Bragg diélectriques (DBRs). Chaque DBR est constitué d'un empilement successif de plusieurs couches d'indices optiques différents permettant de réfléchir la quasi totalité de l'onde incidente via des phénomènes d'interférences constructives. La réflectivité maximale est obtenue pour une épaisseur de couche définie par  $e = \lambda/4n$  où  $n$  est l'indice optique de la couche. Dans notre cas, les DBRs sont composées de couches AlAs d'indice  $n_{\text{AlAs}} = 3$  et GaAs d'indice  $n_{\text{GaAs}} = 3.5$  (à 900 nm). La figure 2.24 (a) montre une image MEB de la MC où l'on aperçoit l'empilement successif des couches constituant les DBRs. Afin d'optimiser la collection des photons émis par les BQs, le nombre de DBRs inférieurs et supérieurs est asymétrique, respectivement 18 et 5 paires. Dans cette configuration, le facteur de qualité de la cavité vaut  $Q = 180$ . Le temps de vie des photons dans la MC est donné par  $\tau_c = Q/\omega_0$  où  $\omega_0 \approx 1.35 \text{ eV}/\hbar$  est la fréquence de résonance de la MC. On trouve un temps de vie  $\tau_c \approx 150 \text{ fs}$  comparable à la largeur temporelle des impulsions laser. La cavité ne limite donc pas la résolution temporelle de notre expérience et permet de mesurer des dynamiques ultra-rapides.

L'autre intérêt de la MC est d'amplifier le champ intra-cavité. La figure 2.25 (b) présente des simulations numériques de l'amplification du champ électrique par la cavité optique. Dans cette configuration, le champ intra-cavité est amplifié d'un facteur  $\sqrt{Q} \approx 13$  au niveau de la position des BQs. Cette amplification permet ainsi de réduire la puissance totale de l'excitation d'un facteur  $Q^{3/2} \approx 2400$  (trois champs électriques), et ainsi d'augmenter le rapport signal sur bruit (SNR) de deux ordres de grandeurs par rapport à une BQ sans cavité. La figure 2.25 (c) montre une simulation du spectre de réflectivité de la MC. La largeur du mode de cavité  $\Delta\omega = \omega/Q \approx 10 \text{ nm}$ , correspond à la largeur spectrale des impulsions laser. Lorsque la fréquence centrale du laser est accordée spectralement avec le mode de la cavité, la réflectivité totale du laser est atténuée d'environ 8 %. La longueur d'onde du mode de cavité dépend de l'épaisseur des couches AlAs/GaAs des DBRs, il varie donc entre les bords et le centre de l'échantillon. Nous avons utilisé deux types de MCs avec deux modes de résonance centrés autour de 915 et 945 nm. La figure 2.26 (b) illustre un exemple de spectre de réflectivité (en bleu) à 917 nm en lumière blanche d'une MC. Le

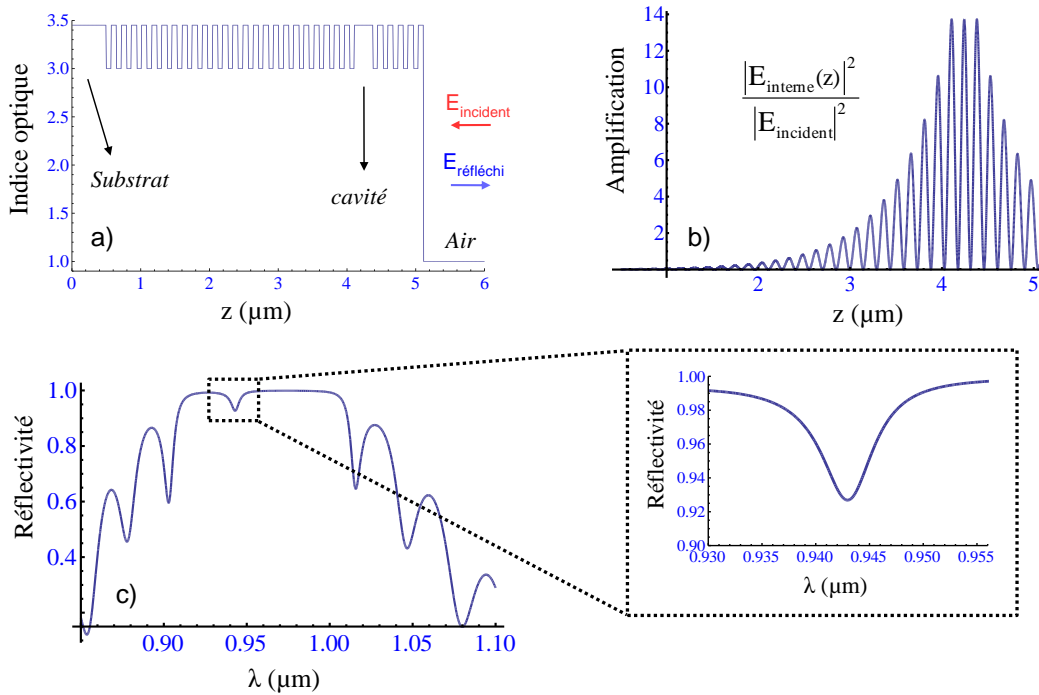


FIGURE 2.25 – Simulations numériques de l'indice optique, du champ intra-cavité et de la réflectivité de la MC. (a) Variation de l'indice optique de la MC en fonction de l'axe de croissance. (b) Amplification du champ intra-cavité en fonction de l'axe de croissance. Le maximum est atteint au niveau du plan de BQs. (c) Évolution de la réflectivité en fonction de la longueur d'onde, et zoom sur le mode de cavité (F. Fras, Institut Néel).

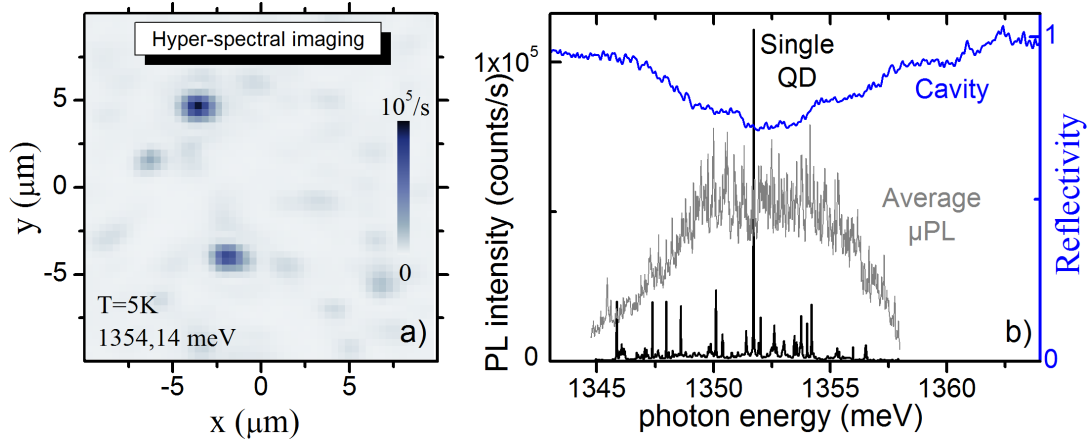


FIGURE 2.26 – Caractérisation de l'échantillon en  $\mu\text{PL}$  à  $T = 5\text{ K}$ . a) Exemple d'imagerie hyperspectrale  $10 \times 10\ \mu\text{m}^2$  de la MC. L'échantillon est excité avec un laser continu de  $0.3\ \mu\text{W}$  centré à  $1.734\ \text{eV}$  à la surface de l'échantillon. Les zones bleues correspondent à l'émission de BQs. b) Noir : exemple d'un spectre de  $\mu\text{PL}$  montrant des raies d'émission excitoniques. Gris : spectre  $\mu\text{PL}$  moyenné sur  $400\ \mu\text{m}^2$ . Bleu : spectre de réflectivité de la MC mesuré avec une lampe blanche montrant le mode de cavité. Notons que le spectre de réflectivité réel (pour  $k = 0$ ) est moins large que celui que l'on mesure car on collecte tous les angles.

spectre de  $\mu\text{PL}$  (en noir) rend compte de l'efficacité de collection du signal pour les BQs centrées avec le mode de cavité. Afin de repérer et sélectionner les BQs les plus lumineuses, nous avons réalisé des images hyperspectrales en  $\mu\text{PL}$  de la MC. La figure 2.26 (a) montre un exemple de carte tridimensionnelle ( $x, y, \lambda$ ) obtenue à  $T = 5 \text{ K}$ . A  $1354 \text{ meV}$ , deux BQs distantes d'environ  $10 \mu\text{m}$  atteignent un niveau de signal significatif de  $10^5$  coups/s. Le facteur de qualité relativement faible de ce type de MC ne peut expliquer à lui seul un tel niveau de signal.

En effet, une imagerie topographique de la surface de la MC (cf figure 2.27) réalisée avec un microscope à force atomique (AFM) montre une mosaïque de défauts ovoïdaux apparus très probablement durant la croissance des DBRs supérieurs. La taille typique de ces défauts est en moyenne de  $3 \mu\text{m}$  de long pour  $1 \mu\text{m}$  de large, et pour une hauteur comprise entre 10 et 20 nm. Cette différence de hauteur localisée spatialement, également appelée *mesa*, agit comme un potentiel de confinement bidimensionnel sur le mode de photon de la cavité [41], et permet ainsi d'augmenter l'efficacité de collection des photons. Une expérience d'autocorrélation  $g^2(0)$  effectuée sur un échantillon similaire à celui présenté ici, a mesuré une augmentation de l'efficacité de collection de l'émission spontanée d'un facteur  $\beta = 42 \% \pm 5 \%$  [40] en présence d'un défaut. Cette mesure a été validée par des simulations numériques présentées sur la figure 2.28 (d). D'après ces simulations, la présence d'un défaut augmente l'efficacité de collection suivant deux modes de résonance, pour atteindre  $\beta = 48 \%$ , contre  $\beta = 30\%$  sans défaut. En accord avec les images AFM que nous avons réalisées, ces simulations montrent également que la hauteur optimale des défauts est proche de 20 nm.

## 2.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une méthode de spectroscopie cohérente non-linéaire de mélange à quatre ondes, permettant de mesurer la réponse cohérente non-linéaire d'émetteurs solides individuels tels que des BQs semiconductrices fortement confinées. Trois points cruciaux du dispositif expérimental ont été abordés : l'hétérodynage optique, l'interférométrie spectrale et le confinement des émetteurs dans une microcavité planaire en couplage faible. La combinaison de ces trois techniques constitue un défi technologique, et représente un progrès considérable dans l'étude de phénomènes non-linéaires dans des nanostructures semiconductrices. Le dispositif expérimental que nous avons développé permet de mesurer les dynamiques de population et de cohérence d'excitons individuels, faiblement ou fortement confinées dans des BQs, du visible au proche infrarouge. Le temps de vie  $T_1$  et de cohérence  $T_2$  d'un exciton est désormais accessible en quelques minutes. Par ailleurs, le niveau de signal atteint rend désormais possible l'étude des mécanismes de déphasage et de couplage cohérent à l'échelle de la BQ unique. Nous détaillerons ces résultats dans les chapitre 3 et 4. Nous verrons également dans le chapitre 5, que la configuration à trois faisceaux donne accès à la polarisation non-linéaire de cinquième ordre, et au contrôle cohérent de la réponse non-linéaire de troisième ordre d'excitons individuels.

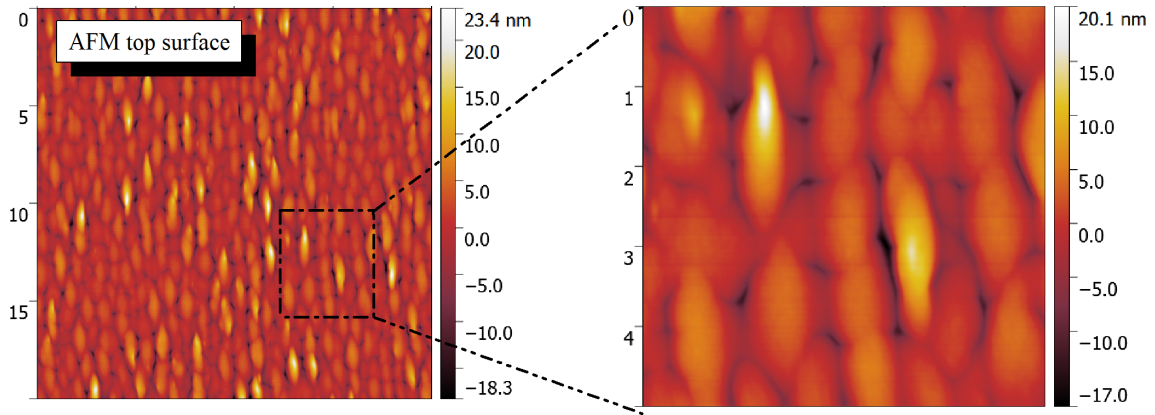


FIGURE 2.27 – Images topographiques de la surface de l'échantillon réalisées avec un microscope à force atomique (AFM),  $20 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$  (gauche) et  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$  (droite) révélant les défauts présents à la surface de la MC avec une densité spatiale de  $0.1 \mu\text{m}^{-2}$  (Simon Le-Denmat, Institut Néel).

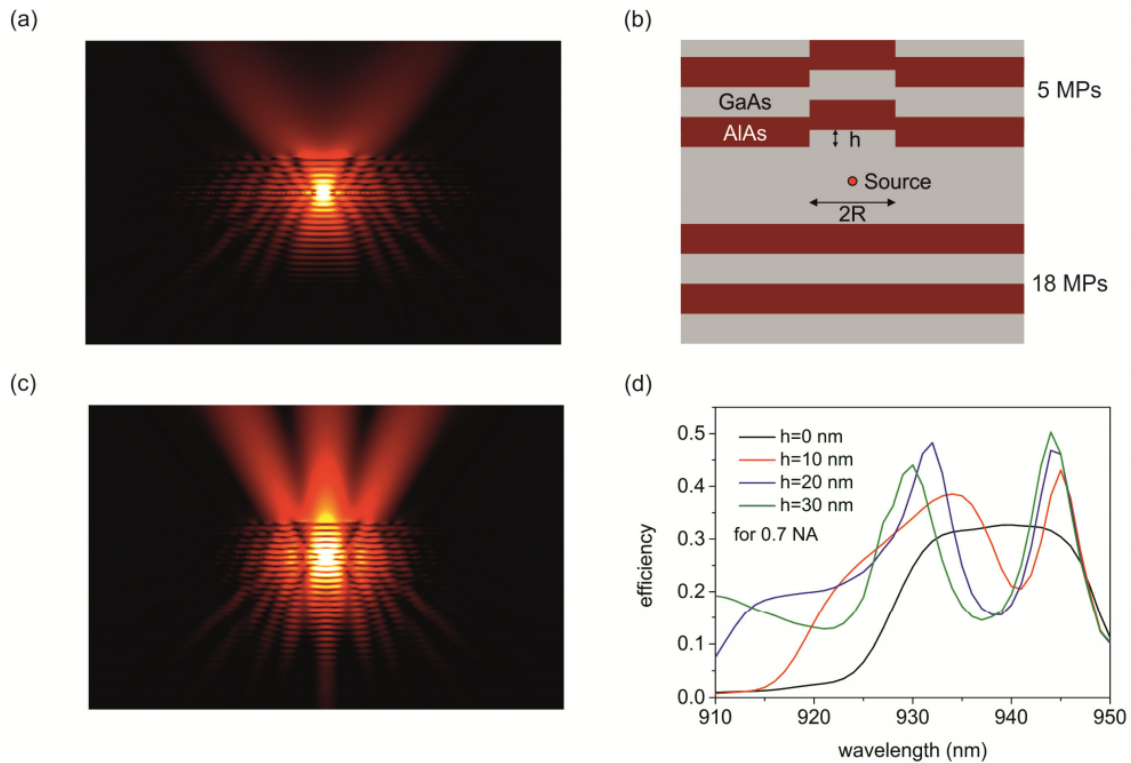


FIGURE 2.28 – **Simulations numériques des défauts photoniques.** (a) Profil d'amplitude du champ électrique dans la MC. (b) Représentation schématique de la MC en présence d'un défaut dans les miroirs de Bragg. (c) Profil d'amplitude du champ électrique en présence d'un défaut. (d) Simulation de l'efficacité d'extraction de la MC en fonction de la hauteur du défaut (S. Maier *et al.* [40]).

## Chapitre 3

# Mécanismes de décohérence d'excitons individuels

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Contrôle cohérent optique d'un exciton unique</b>	<b>52</b>
3.1.1	Oscillations de Rabi de la polarisation d'un exciton	52
3.1.2	Absorption et saturation des populations d'un exciton	56
<b>3.2</b>	<b>Dynamiques des populations et des cohérences d'excitons individuels</b>	<b>57</b>
3.2.1	Limite radiative	57
3.2.2	Diffusion spectrale : élargissement inhomogène de la raie	59
<b>3.3</b>	<b>Mécanismes de décohérence d'un exciton unique</b>	<b>62</b>
3.3.1	Déphasage pur d'un exciton unique	62
3.3.2	Déphasage induit par les phonons acoustiques	63
3.3.2.1	Phonons optiques et acoustiques	63
3.3.2.2	Modèle de Boson indépendant	64
3.3.2.3	Ailes de phonons et polaron acoustique	66
3.3.2.4	Couplage quadratique aux phonons acoustiques	68
3.3.2.5	Élargissement inhomogène de la ZPL	71
3.3.2.6	Déphasage induit par les phonons pendant l'excitation	73
3.3.3	Dynamique spectrale des phonons acoustiques : cavité phononique?	75
<b>3.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>78</b>

---

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à l'effet de l'environnement solide sur la réponse cohérente d'excitons individuels. Dans un premier temps, je présenterai deux expériences permettant de contrôler l'état quantique d'un système à deux niveaux ( $2\mathcal{LS}$ ), correspondant à un exciton confiné dans une BQ, afin de déterminer le régime linéaire de l'excitation. Nous nous intéresserons ensuite aux dynamiques de cohérence et de population de différentes transitions excitoniques, afin de déterminer leurs temps de population  $T_1$  et de cohérence  $T_2$ , en présence d'élargissement inhomogène. Enfin, nous mettrons en évidence le rôle des phonons acoustiques dans la décohérence de ces transitions à travers trois processus de déphasage, ainsi que leur dynamique spectrale durant la formation du polaron acoustique.

### 3.1 Contrôle cohérent optique d'un exciton unique

#### 3.1.1 Oscillations de Rabi de la polarisation d'un exciton

En présence d'un champ électrique résonant, un  $2\mathcal{LS}$  absorbe et émet cycliquement par émission stimulée des photons d'énergie quantifiée  $\hbar\omega_0$ , correspondant à la différence d'énergie entre les deux niveaux. Au cours de ce processus, les populations et les cohérences oscillent en quadrature, donnant lieu à des *oscillations de Rabi*. Ces oscillations caractérisent la force du couplage entre le champ électrique et le  $2\mathcal{LS}$ . La fréquence des oscillations, appelée *fréquence* ou *pulsation de Rabi*, est définie telle que :

$$\Omega_R(t) = \frac{\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)}{\hbar} \quad (3.1)$$

où  $\mu$  est le dipôle électrique de la transition et  $E(t)$  est le champ électrique appliqué. Il est possible de contrôler de manière cohérente l'état d'un  $2\mathcal{LS}$  en contrôlant l'amplitude du champ électrique. La première observation expérimentale d'oscillations de Rabi d'un  $2\mathcal{LS}$  a été réalisée en 1938 par résonance magnétique nucléaire [42], en contrôlant l'état du spin nucléaire de molécules LiCl avec un champ magnétique. La première mesure optique d'oscillations de Rabi a été réalisée en 1973 en mesurant l'inversion de population d'un atome de Rubidium [43]. Dans les semiconducteurs, la première observation d'oscillations de Rabi d'un exciton fortement confiné dans une BQ a été réalisée en 2001 en mesurant la transmission différentielle du signal pompe-sonde de BQs individuelles [44]. Dans cette expérience, les oscillations de Rabi de l'exciton sont réalisées avec un train d'impulsions optiques résonantes, ultra-courtes. *L'angle de rotation de Rabi* est alors déterminée par l'aire de l'impulsion :

$$\Theta(t) = \int_{-\infty}^t \Omega_R(t') dt' \quad (3.2)$$

La rotation du vecteur de Bloch peut donc être simplement contrôlée avec l'amplitude du champ électrique de l'impulsion optique. Notons que la fréquence de Rabi dépend également du dipôle de l'exciton. La force d'oscillateur, résultant du couplage dipolaire du champ électrique avec la fonction d'onde de l'exciton, augmente avec la taille de la BQ.

La figure 3.2 montre le signal FWM de deux excitons neutres. L'augmentation de la puissance de la pompe permet de contrôler la rotation de leur vecteur de Bloch. La figure 3.3 montre les oscillations de Rabi mesurées pour l'exciton à 1.358 eV en fonction de la puissance  $\sqrt{P_1}$  et de l'aire d'impulsion  $\Theta_1$  de la pompe. Chaque point représente une intégration spectrale de l'amplitude du signal FWM de la transition. La séquence d'impulsion correspondante est illustrée sur la figure 3.1 (a). L'aire d'impulsion de la sonde est fixée à  $\Theta_2 = \pi$ . Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, l'amplitude du signal FWM correspond à la projection du vecteur de Bloch dans le plan équatorial  $(u, v)$  de la sphère de Bloch, et suit une évolution sinusoïdale en fonction de l'aire de la pompe. Sans excitation ( $\Theta_1 = 0$ ), le  $2\mathcal{LS}$  est dans l'état fondamental (BQ vide), aucune polarisation n'est créée. Lorsque  $\Theta_1 = \pi/2$  (voir figure 3.1 (b)), la norme du vecteur de Bloch projetée dans le plan  $(u, v)$  est maximale, le  $2\mathcal{LS}$  est une superposition cohérente de l'état fondamental et de l'état excité (exciton dans la BQ). En d'autre terme, la conversion de la polarisation de premier ordre  $p^{(1)}$  vers la polarisation de troisième ordre  $p^{(3)}$  que nous mesurons à travers le signal FWM est maximale. A l'inverse, une aire d'impulsion pompe  $\Theta_1 = \pi$  revient à peupler totalement l'état excité sans créer de polarisation de premier ordre (voir figure 3.1 (c)). La projection du vecteur de Bloch dans le plan des cohérences est donc nulle. Aucune polarisation de troisième ordre n'est créée, le signal FWM est nul. Pour



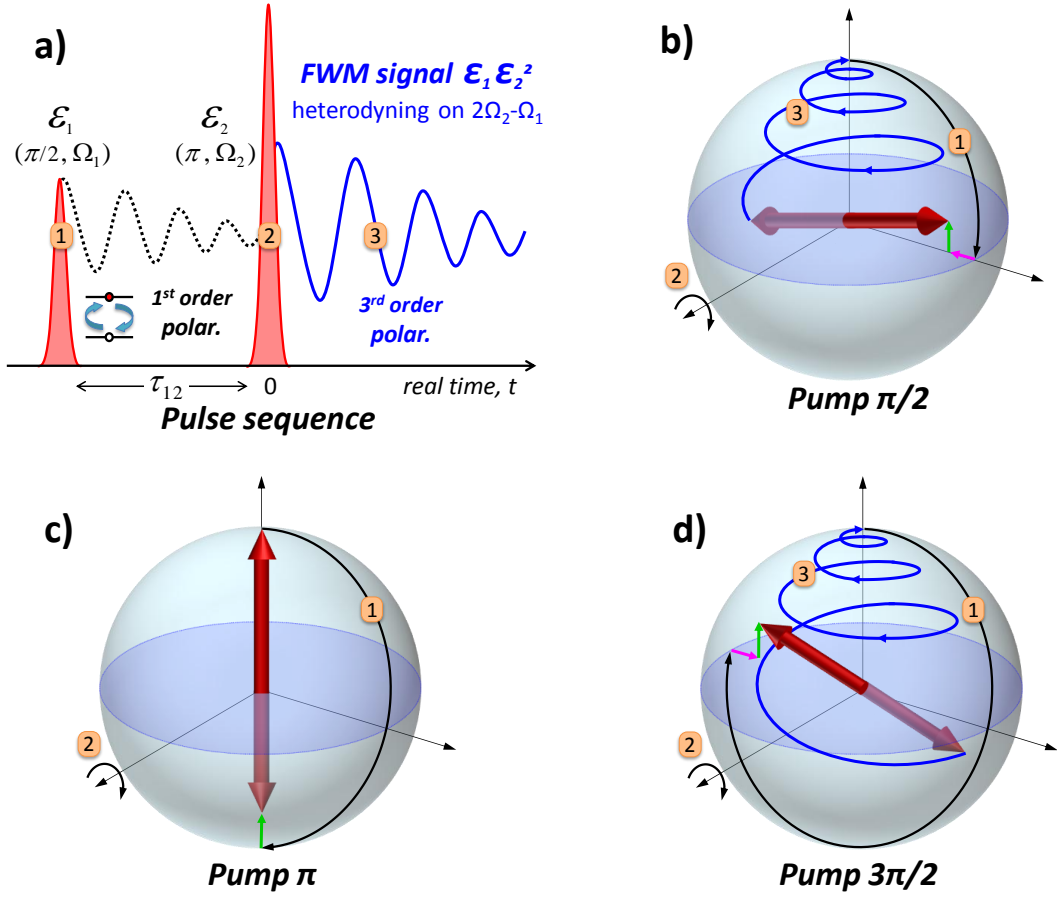


FIGURE 3.1 – (a) Séquence d'impulsion utilisée pour réaliser les oscillations de Rabi de la figure 3.3 et 3.4. La pompe génère la polarisation de premier ordre qui est convertie par la sonde (dégénérée) vers la polarisation de troisième ordre mesurée via le signal FWM à la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . (b)-(d) Évolution du vecteur de Bloch dans le référentiel tournant à  $\omega_0 + \Omega_1$  pour  $\Theta_1 = (\pi/2, \pi, 3\pi/2)$  et  $\Theta_2 = \pi$ . Les flèches vertes et roses représentent la décohérence dans le cas d'un état mixte.

$\Theta_1 = 3\pi/2$  (voir figure 3.1 (d)), la projection du vecteur de Bloch est maximale mais inversée de  $\pi$  par rapport à  $\Theta_1 = \pi/2$ , la conversion de  $p^{(1)}$  vers  $p^{(3)}$  est maximale, le signal FWM mesuré redevient maximum. Enfin pour  $\Theta_1 = 2\pi$ , le vecteur de Bloch effectue une rotation complète sur la sphère, le  $2\mathcal{LS}$  retourne dans l'état fondamental avant l'arrivée de l'impulsion  $\pi$ . Cette dernière peuple l'état excité sans créer de polarisation, le signal FWM est nul. Et ainsi de suite.

En l'absence de décohérence, le vecteur de Bloch se déplace sur la surface de Bloch (cas pur). La norme de la projection du vecteur dans le plan équatorial oscille donc entre 0 pour  $\Theta_1 = \pi$  [2 $\pi$ ] et 1 pour  $\Theta_1 = \pi/2$  [2 $\pi$ ]. En présence de décohérence, une partie de la polarisation de l'exciton est dissipée. Ce déphasage induit pendant l'excitation (EID), engendre un amortissement des oscillations de Rabi de l'exciton que l'on observe pour  $\Theta_1 > \pi$ . Nous verrons plus en détail dans la partie 3.3.2.6 l'origine de ce déphasage.

Dans l'échantillon, l'orientation des dipôles excitoniques, la taille des BQs et leurs couplages avec le mode de la cavité varient. Chaque transition excitonique est donc caractérisée par une force d'oscillateur propre. Pour définir le régime d'excitation linéaire  $\chi^{(3)}$ , il est donc primordial de mesurer les oscillations de Rabi pour chaque exciton. Pour cet exciton,

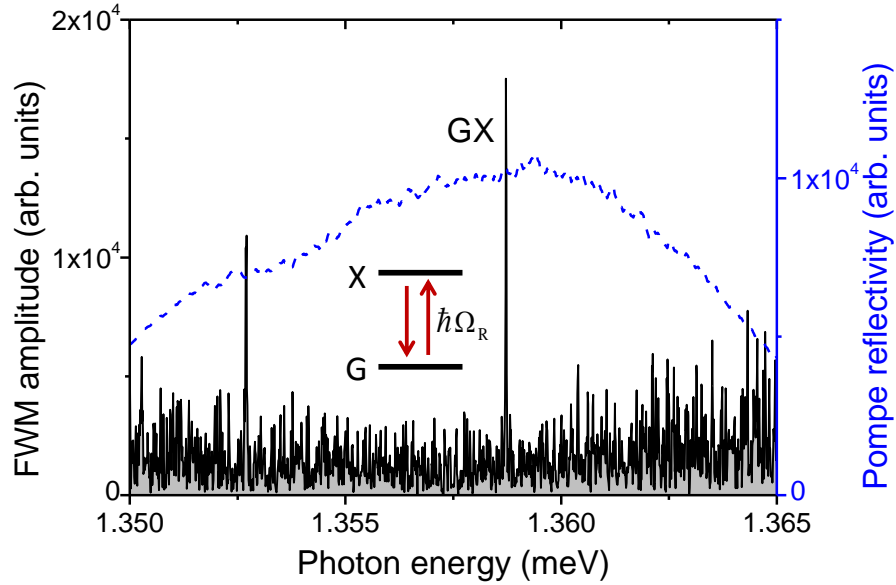


FIGURE 3.2 – Signal FWM d'excitons confinés dans des BQs InAs/GaAs à T = 4 K. Le spectre d'excitation après le filtrage spectral est représenté par les traits pointillés bleus.

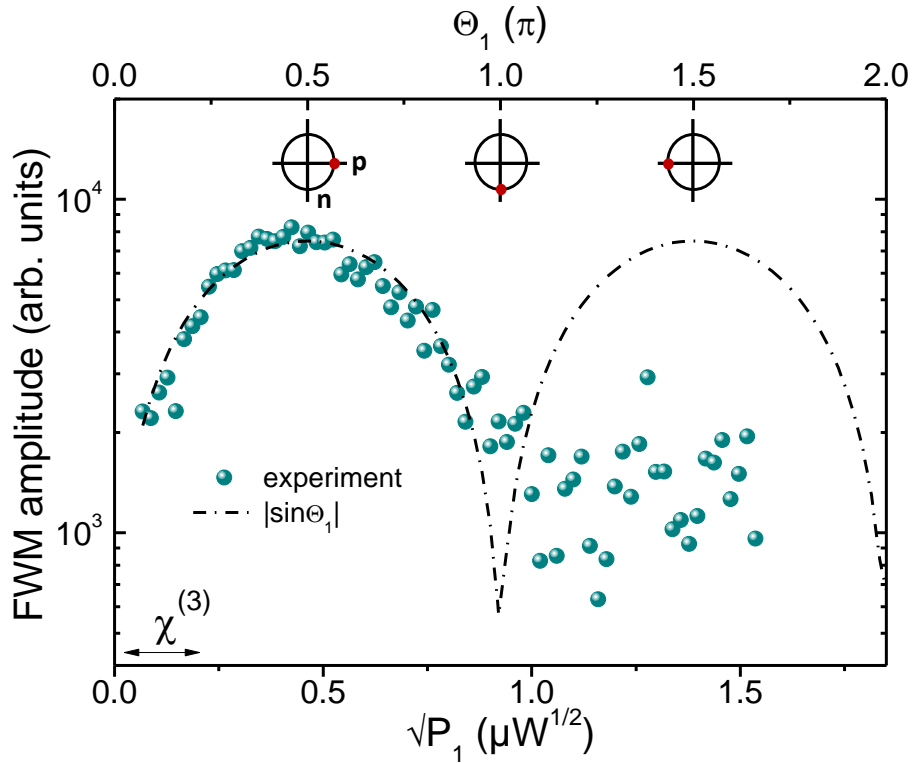


FIGURE 3.3 – Oscillations de Rabi de GX en fonction de la puissance de la pompe. Amplitude du signal FWM intégré spectralement en fonction de la puissance d'excitation  $\sqrt{P_1}$  et de l'aire de l'impulsion  $\Theta_1$  pour  $\Theta_2 = \pi$  et  $\tau_{12} = 0.2$  ps. On observe des oscillations de Rabi  $\propto |\sin \Theta_1|$  (traits pointillés noirs), représentées schématiquement par la rotation du vecteur de Bloch dans le plan  $(u, w)$ . Le régime linéaire d'excitation  $\chi^{(3)}$  est obtenu pour  $\sqrt{P_1} < 0.25 \mu\text{W}^{1/2}$ .

le régime  $\chi^{(3)}$  est observé pour une puissance d'excitation  $\sqrt{P_1} < 0.25 \mu\text{W}^{1/2}$ . Dans la pratique, l'intensité de la pompe et de la sonde sont contrôlées en variant la puissance du signal électrique envoyé aux AOMs radio-fréquences.

De la même manière que pour la pompe, nous avons effectué des oscillations de Rabi en variant la puissance de la sonde (figure 3.4). La puissance de la pompe est fixée à  $\Theta_1 = \pi/2$ . Comme attendu, l'amplitude du signal FWM intégré décrit une oscillation de Rabi  $\propto \sin^2(\Theta_2/2)$  [34]. Le signal FWM est maximal pour  $\Theta_2 = \pi$ , i.e. quand la sonde inverse totalement la phase de la polarisation de premier ordre créée par la pompe sans changer la norme du vecteur de Bloch dans le plan équatorial (voir figure 3.1 (b)).

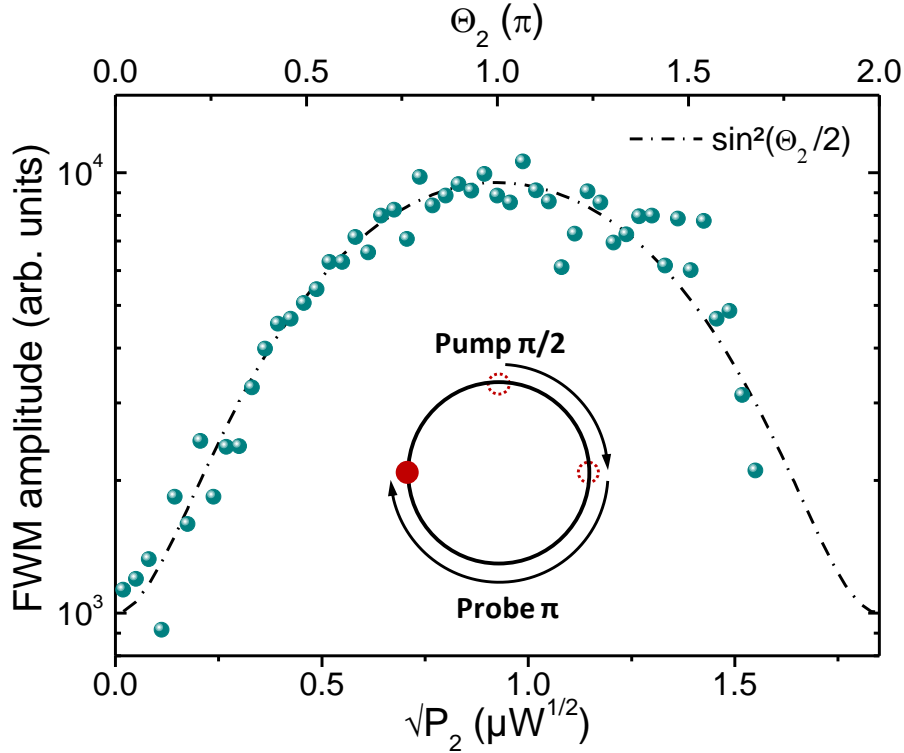


FIGURE 3.4 – **Oscillations de Rabi d'un exciton en fonction de la puissance de la sonde.** Amplitude du signal FWM intégrée spectralement en fonction de la puissance d'excitation  $\sqrt{P_2}$  et de l'aire de l'impulsion  $\Theta_2$  pour  $\Theta_1 = \pi/2$  et  $\tau_{12} = 0.2$  ps. Comme attendu, le signal FWM montre une dépendance en  $\sin^2(\Theta_2/2)$  et atteint un maximum pour  $\Theta_2 = \pi$ .

Ces résultats montrent la possibilité d'utiliser les BQs semiconductrices pour contrôler optiquement l'état quantique d'un exciton en utilisant des impulsions résonantes. La rotation de l'exciton est alors simplement réalisée en contrôlant la puissance des lasers d'excitations. Ce type de protocole démontre tout l'intérêt d'utiliser des BQs comme *qubits* solides pour réaliser des opérations logiques, ce qui représente un prérequis en informatique quantique.

### 3.1.2 Absorption et saturation des populations d'un exciton

Dans la partie 3.1.1, nous avons vu que le signal FWM permet de mesurer et contrôler la polarisation d'un exciton avec l'aire des impulsions pompe et sonde. Quand l'amplitude du signal FWM est suffisamment intense ( $10^4$  coups/s), il est possible d'observer directement l'absorption linéaire de l'exciton dans la réflectivité de la sonde. Ce type de mesure est très compliqué expérimentalement car le signal provenant de la BQ est très faible par rapport à l'excitation résonante qui sature la CCD. Deux points cruciaux nous ont permis de réaliser cette expérience : la microcavité planaire qui nous a permis de réduire la puissance d'excitation jusqu'à quelques dizaines de nanowatts tout en collectant efficacement le signal de la BQ, et le mode *haute capacité* de la CCD qui permet de collecter jusqu'à  $5 \times 10^4$  coups/intégration. Ainsi, en plaçant une densité optique sur la détection, le signal mesuré est suffisamment fort et la puissance d'excitation suffisamment faible pour ne pas saturer la CCD.

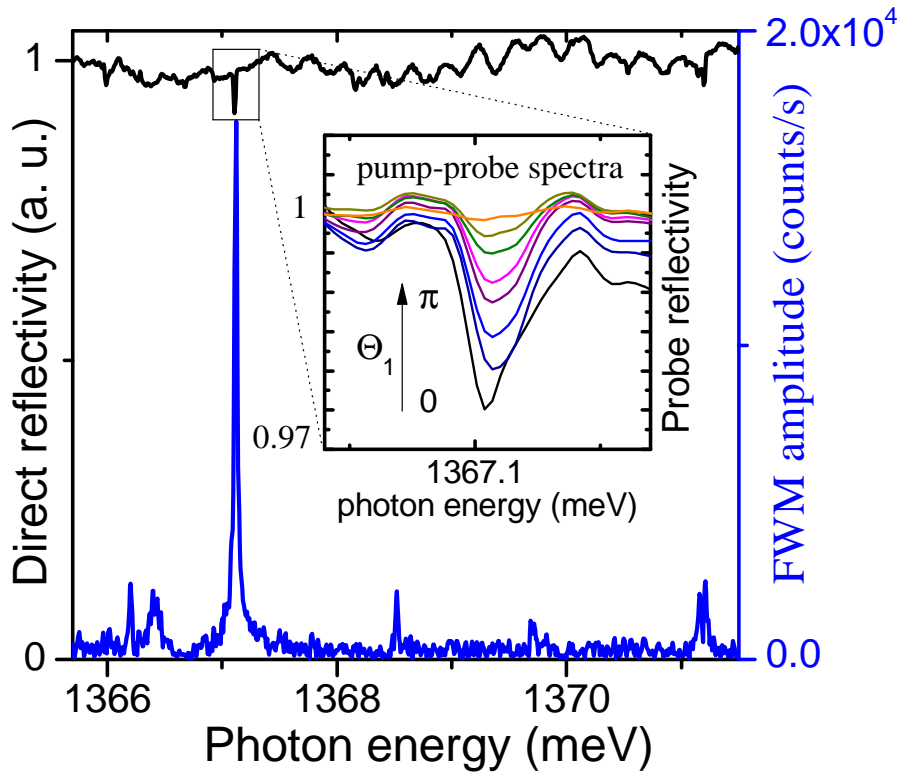


FIGURE 3.5 – Mesure du signal FWM (bleu) et pompe-sonde (noir) montrant l'absorption linéaire d'un exciton dans la réflectivité de la sonde. L'encadré présente l'absorption en fonction de l'aire d'impulsion de la pompe jusqu'à la saturation  $\Theta_1 = \pi$ .

Sur la figure 3.5, nous comparons le signal FWM (bleu) et la réflectivité de la sonde (noir), provenant de la même position spatiale et spectrale de l'échantillon. Le signal FWM, détecté à la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ , révèle la présence d'une transition dominante à 1367.7 meV. A cette même énergie, nous observons un creux d'environ 3 % dans la réflectivité de la sonde, détecté à la fréquence hétérodyne  $\Omega_2$ . On attribue ce creux à l'absorption de premier ordre de la pompe par la transition excitonique dominante. Pour confirmer que ce pic d'absorption correspond effectivement à un exciton, nous avons mesuré sa saturation en fonction de la puissance d'excitation. Le résultat de cette expérience est illustré dans l'encadré de la figure 3.5. Quand  $\Theta_1 = 0$ , seule la sonde est absorbée par l'exciton, l'ampli-

tude du creux dans la réflectivité de la sonde est maximum (courbe noire). En augmentant graduellement la puissance de la pompe, l'amplitude du creux diminue progressivement jusqu'à zéro pour  $\Theta_1 = \pi$  (orange). Autrement dit, l'exciton absorbe progressivement la pompe jusqu'à sa saturation correspondant à la population maximale de l'exciton. Comme pour la polarisation, l'inversion de population d'un exciton décrit des oscillations de Rabi, dont le signal mesuré (ici la réflectivité de la sonde) est proportionnel à  $\cos^2(\Theta/2)$ .

La mesure de l'absorption linéaire d'un exciton unique atteste de la qualité de l'échantillon et de l'efficacité de notre détection. En utilisant les avantages de la microcavité et de la détection hétérodyne, nous démontrons qu'il est possible de mesurer et de contrôler avec un seul dispositif expérimental, à la fois les cohérences et les populations d'un  $2\mathcal{LS}$ , tel qu'un exciton fortement confiné dans une BQ InAs/GaAs. Ce résultat montre également la qualité de soustraction du bruit de notre dispositif expérimental. Nous allons maintenant étudier les dynamiques temporelles des cohérences et des populations d'excitons individuels dans le régime d'excitation linéaire.

## 3.2 Dynamiques des populations et des cohérences d'excitons individuels

### 3.2.1 Limite radiative

Dans le chapitre 1, nous avons vu qu'un  $2\mathcal{LS}$ , en l'absence d'excitation et de perturbation extérieure, est décrit par deux temps caractéristiques  $T_1$  et  $T_2$ . Le premier temps  $T_1$  correspond au temps de recombinaison radiative de l'exciton par émission spontanée d'un photon d'énergie  $\hbar\omega_0$ , c'est-à-dire au *temps de vie* de l'exciton. Ce temps caractérise le déclin temporel de la population excitonique  $N(t)$ , dont la décroissance est exponentielle :

$$N(t) = N_0 e^{-t/T_1} \quad (3.3)$$

où  $N_0 = 1$  est la population initiale de l'exciton. Le deuxième temps caractéristique  $T_2$  correspond au temps de déphasage du dipôle excitonique, c'est-à-dire au *temps de décohérence* de l'exciton. Ce temps caractérise le déclin temporel de la polarisation excitonique  $P(t)$ , dont la décroissance est également exponentielle :

$$P(t) = P_0 e^{-t/T_2} \quad (3.4)$$

où  $P_0$  est la polarisation initiale de l'exciton. Sans interaction avec l'environnement, la cohérence de l'exciton est uniquement détruite par la recombinaison radiative de l'exciton. Autrement dit, la norme du vecteur de Bloch projetée dans le plan  $(u, v)$  des cohérences, diminue au fur et à mesure de la rotation du vecteur dans le plan  $(u, w)$  des populations (cf chapitre 1). La décohérence est alors limitée par le temps de vie radiatif de l'exciton, on parle de *déphasage radiatif*. On aboutit ainsi à l'équation de *limite radiative* liant  $T_1$  et  $T_2$  telle que :

$$T_2 = 2T_1 \quad (3.5)$$

La figure 3.6 présente un exemple d'exciton limité radiativement à basse température ( $T = 4$  K). Pour mesurer le temps de vie de l'exciton (figure 3.6 (b)), nous intégrons spectralement le signal ND-FWM, en augmentant progressivement le délai  $\tau_{23}$  entre  $\mathcal{E}_2$  et  $\mathcal{E}_3$  (voir le schéma). La première impulsion  $\mathcal{E}_1$  génère la polarisation de premier ordre  $p^{(1)}$ , qui est convertie après le délai  $\tau_{12}$  en population de second ordre  $n^{(2)}$  par la deuxième impulsion

$\mathcal{E}_2$ . Cette population évolue librement au cours du délai  $\tau_{23}$ , puis est convertie par la troisième impulsion  $\mathcal{E}_3$  vers la polarisation de troisième ordre  $p^{(3)}$  que nous mesurons via le signal ND-FWM détecté à la fréquence hétérodyne  $\Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$ . Ce signal est proportionnel à la population excitonique résiduelle, dont le déclin temporel varie en fonction de  $\tau_{23}$ . Pour éviter les processus d'absorption à deux photons, nous fixons le délai  $\tau_{12} = 1.5$  ps afin de ne pas recouvrir temporellement  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ . Pour maximiser le signal FWM, les aires d'impulsion sont choisies telles que  $\Theta_1 = \Theta_2 = \Theta_3 = \pi/2$ . Chaque point expérimental correspond à un délai  $\tau_{23}$  pour lequel nous avons intégré spectralement l'amplitude du signal FWM puis soustrait la valeur moyenne du bruit. Comme attendu, le déclin temporel de la population excitonique est décrit par une exponentielle décroissante représentée par la droite rouge (échelle logarithmique). L'ajustement de ce déclin exponentiel sur les points expérimentaux nous renseigne directement sur le temps de vie de l'exciton  $T_1 = 390 \pm 25$  ps, donné par la pente de la droite.

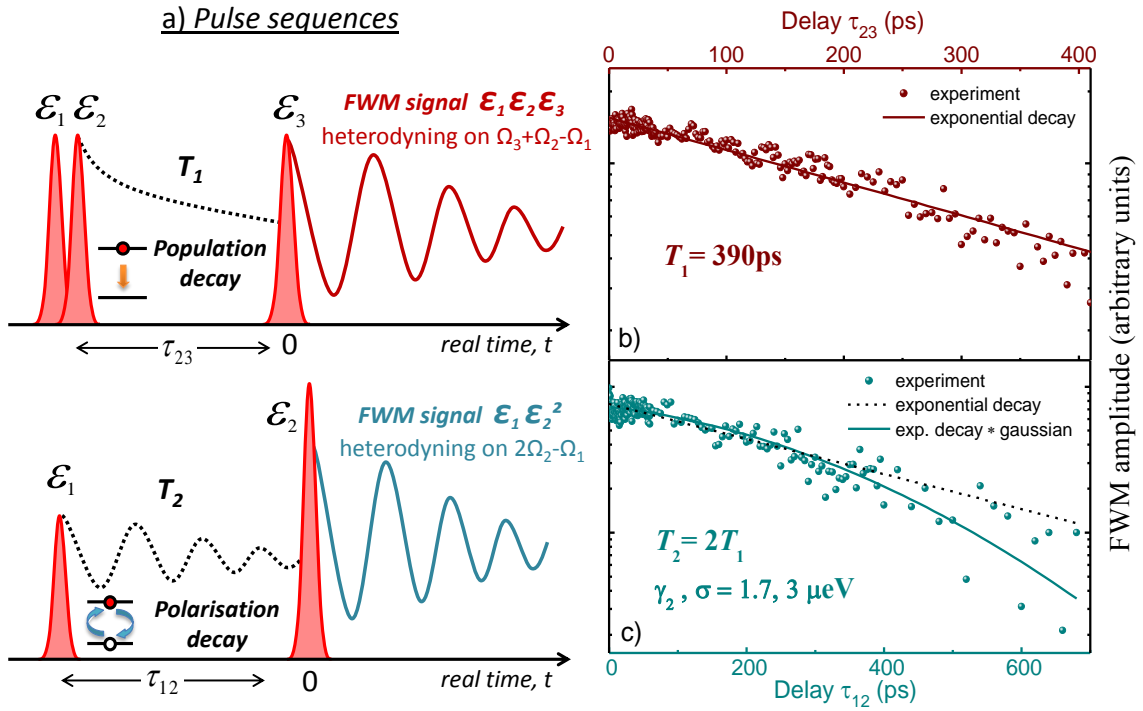


FIGURE 3.6 – Déphasage radiatif d'un exciton unique confiné dans une BQ InAs à  $T = 4$  K. (a) Séquences d'impulsions correspondant aux mesures des dynamiques de population et de cohérence de l'exciton. (b) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$ . Courbe rouge : décroissance exponentielle obtenue pour un temps de déclin  $T_1 = 390$  ps. (c) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$ . Traits pointillés noirs : décroissance exponentielle obtenue pour un temps de déclin  $T_2 = 362$  ps. Courbe cyan : ajustement basé sur la convolution d'une distribution gaussienne de largeur  $\sigma = 3 \mu\text{eV}$  et d'une décroissance exponentielle avec un taux de déclin  $\gamma_2 = 2\hbar/T_2 = 1.7 \mu\text{eV}$ , permettant de décrire l'élargissement homogène de la raie excitonique en présence d'élargissement inhomogène [45] (les détails sont donnés dans la partie 3.2.2).

Il est important de préciser que le taux d'émission spontanée de cet exciton est exalté du facteur de Purcell  $F_p$  de la cavité (voir chapitre 2). Le temps de vie moyen d'un exciton fortement confiné dans une BQ InAs/GaAs est de l'ordre de la nanoseconde, et peut varier de  $20 \pm 5 \%$  dans un échantillon de BQs auto-assemblées [46]. Nous estimons donc que le

facteur de Purcell de cette microcavité est environ de  $F_p = 2.5 \pm 0.5$ . Les défauts photoniques répartis aléatoirement sur la surface de l'échantillon sont probablement responsables de la diminution des temps de vie mesurés, mais cela n'a pas été vérifié expérimentalement.

Pour mesurer la décohérence de cet exciton (figure 3.6 (c)), nous intégrons spectralement le signal D-FWM en augmentant progressivement le délai  $\tau_{12}$  entre  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  (cf illustration). La première impulsion  $\mathcal{E}_1$  génère la polarisation de premier ordre  $p^{(1)}$  qui évolue librement durant le délai  $\tau_{12}$ . La deuxième impulsion  $\mathcal{E}_2$  (dégénérée temporellement) convertit la polarisation  $p^{(1)}$  en polarisation de troisième ordre  $p^{(3)}$  que nous mesurons via le signal D-FWM détecté sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Ce signal est donc proportionnel à la polarisation excitonique résiduelle, dont le déclin temporel varie en fonction de  $\tau_{12}$ . Comme pour la population de l'exciton, nous nous attendons à mesurer un déclin exponentiel de la polarisation de l'exciton. Cependant, on observe une déviation des points expérimentaux par rapport au déclin exponentiel (traits pointillés noirs) pour les délais longs ( $\tau_{12} > 300$  ps). Nous attribuons cette déviation à la *diffusion spectrale* de l'exciton, qui élargit de manière inhomogène la raie excitonique. Pour prendre en compte cet élargissement, nous fixons  $T_2 = 2T_1$ , correspondant à une largeur homogène  $\gamma_2 = 2\hbar/T_2 = 1.7 \mu\text{eV}$ , et nous convoluons le déclin exponentiel des cohérences avec une distribution gaussienne de largeur à mi-hauteur  $2\sqrt{2\ln 2}\sigma$ . Pour cet exciton, nous mesurons une largeur inhomogène  $\sigma = 3 \mu\text{eV}$  correspondant à un temps de diffusion spectrale  $T_{in} = \hbar/\sigma = 220$  ps. Les détails de cet ajustement sont donnés dans la partie 3.2.2. Le temps de déphasage mesuré pour cet exciton est en accord avec de précédentes études [24, 19] réalisées sur des ensembles de BQs InAs/GaAs auto-assemblées, mesurant des temps de déphasage radiatif entre 400 ps et 2 ns, selon l'énergie de confinement des BQs.

Pour réaliser des BQs limités radiativement [19], il est crucial de pouvoir distinguer les processus de décohérence issus du déphasage pur de l'exciton, des processus incohérents tels que la diffusion spectrale à l'origine de l'élargissement inhomogène de la raie. Ces résultats montrent que la largeur inhomogène  $\sigma$  peut être comparable dans certains cas à la largeur homogène  $\gamma_2$  de la raie excitonique. Mesurer et quantifier l'élargissement inhomogène est donc primordial pour mesurer fidèlement le temps de décohérence d'un exciton. Nous allons maintenant voir comment mesurer fidèlement cette largeur inhomogène.

### 3.2.2 Diffusion spectrale : élargissement inhomogène de la raie

Dans la partie précédente, nous avons vu que la population et la polarisation d'un exciton sont décrites par des décroissances exponentielles, dont les temps caractéristiques de déclin correspondent respectivement au temps de vie et de cohérence de l'exciton. Spectralement, ces dynamiques cohérentes se traduisent par une raie lorentzienne. L'élargissement homogène de la raie excitonique provient uniquement du *déphasage pur* de l'exciton englobant tous les processus de décohérence. Cet élargissement est caractérisé par la largeur homogène  $\gamma_2 = 2\hbar/T_2$ . Nous verrons dans la partie 3.3.1 l'origine de ces mécanismes de déphasage. Une deuxième source d'élargissement provient de la *diffusion spectrale* de la raie excitonique. L'origine de cet élargissement est attribué aux variations électrostatiques de l'environnement de la BQ, comme par exemple le piégeage d'un électron par une impureté ou un défaut dans la couche de GaAs ou dans la couche de mouillage InAs (cf figure 3.7). Ces fluctuations d'environnement engendrent une fluctuation stochastique des niveaux d'énergie de l'exciton par effet Stark confiné quantiquement [47].

Ce processus aléatoire engendre un élargissement gaussien de la raie. Dans le domaine temporel, cet élargissement se traduit par un écho de photon dont l'amplitude est maximale pour  $t = \tau_{12}$ . Par analogie avec l'écho de photon d'un ensemble de BQs, la largeur de

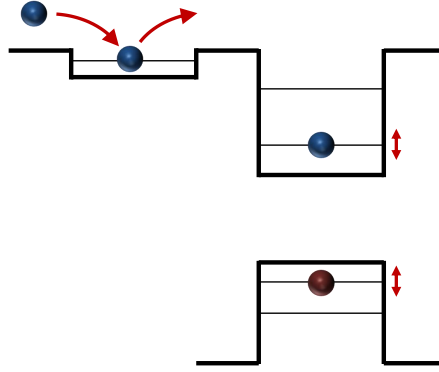


FIGURE 3.7 – Représentation schématique d'une BQ en présence de fluctuation d'environnement.

cet écho caractérise la dispersion inhomogène de l'exciton au cours du temps. En variant le délai  $\tau_{12}$ , l'amplitude de cet écho diminue exponentiellement et son maximum d'amplitude se déplace temporellement. L'intensité du signal FWM mesuré correspond donc à la convolution d'une décroissance exponentielle et d'une distribution gaussienne telle que :

$$I_{in} \propto e^{-\frac{t}{T_2} - \left(\frac{t-\tau_{12}}{T_{in}}\right)^2} \quad (3.6)$$

où  $T_{in} = \hbar/\sigma$  représente le temps caractéristique de diffusion spectrale. Pour les BQs dans la microcavité,  $T_{in}$  est comparable à  $T_2/2$ . La largeur temporelle de l'écho est donc plus grande que la fenêtre temporelle du spectromètre  $\Delta t_s = 200$  ps sur laquelle nous corrigeons le signal mesuré de la réponse temporelle du réseau (voir le chapitre 2). La figure 3.8 représente schématiquement l'évolution de l'écho en fonction du délai  $\tau_{12}$ .

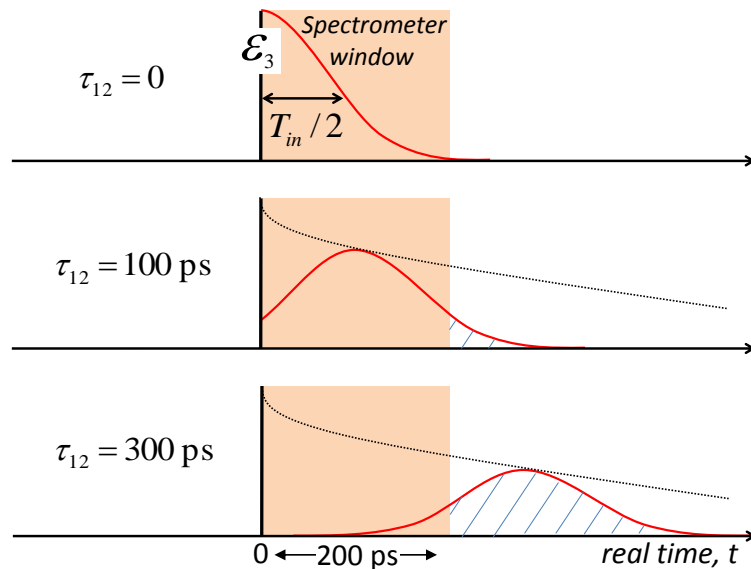


FIGURE 3.8 – Représentation schématique de l'écho de photon en fonction du temps pour trois délais  $\tau_{12}$ . La fenêtre temporelle du spectromètre  $\Delta t_s$  est donnée par la dispersion spectrale du réseau. Pour le réseau 1800 traits/mm,  $\Delta t_s = 200$  ps. Le signal FWM mesuré correspond à la convolution de la réponse du spectromètre et de l'écho, c'est-à-dire à l'intégrale de l'écho dans la fenêtre temporelle corrigée de cette réponse. Les parties rayées correspondent au signal perdu.



Quand  $\tau_{12} = 0$ , l'écho est centré à  $t = 0$ , correspondant à l'arrivée de  $\mathcal{E}_3$ , et son amplitude est maximale. La moitié de l'écho est collectée dans la fenêtre temporelle du spectromètre. A  $\tau_{12} = 100$  ps, l'écho est centré dans la fenêtre temporelle du spectromètre (à  $t = 100$  ps) et son amplitude a diminué exponentiellement de  $\propto e^{-t/T_2}$ . Quand  $T_2 \gg \Delta t_s$ , ce qui est le cas pour la majorité des BQs étudiées, l'amplitude de l'écho est pratiquement constante dans la fenêtre du spectromètre. L'intensité intégrée du signal FWM est donc maximale pour  $\tau_{12} = \Delta t_s/2$ . Cet effet est d'autant plus visible quand la largeur de l'écho est comparable ou inférieure à  $\Delta t_s$ . La figure 3.9 (b) montre un écho de photon pour lequel la largeur inhomogène  $\sigma = 6.4 \mu\text{eV}$  correspond à une largeur temporelle  $T_{in} = 103$  ps. Pour  $\tau_{12} = 100$  ps, la totalité de l'écho est intégrée, le signal FWM atteint son maximum d'amplitude. Nous avons utilisé le modèle d'Erland [45], pour réaliser l'ajustement des points expérimentaux (trait plein), et extraire les contributions homogène  $\gamma_2 = 1.7 \mu\text{eV}$  et inhomogène  $\sigma = 6.4 \mu\text{eV}$ . Quand  $\tau_{12} \gg \Delta t_s$ , seulement une petite partie de l'écho est intégrée, le signal FWM mesuré provient majoritairement de la contribution homogène et décroît exponentiellement. Cependant, la quantité de signal FWM intégrée dans la fenêtre temporelle du spectromètre est très faible et limite la mesure de la cohérence aux délais longs (surtout quand  $T_{in} \leq \Delta t_s$ ). Dans le cas où  $T_{in} \geq T_2$ , il n'est plus possible de distinguer temporellement les deux contributions, le signal mesuré ne présente plus d'écho de photon marqué.

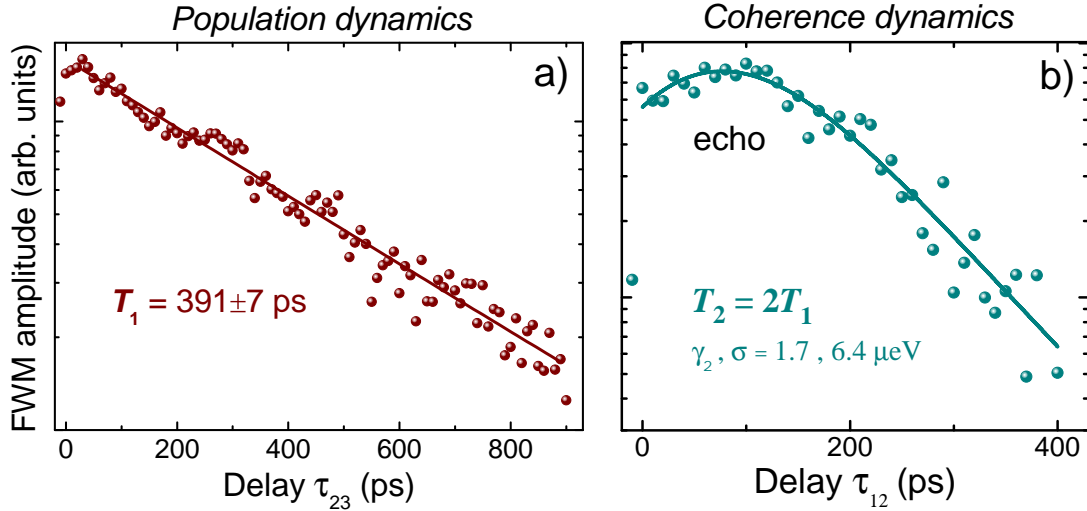


FIGURE 3.9 – Dynamique de population et de cohérence d'un exciton unique à  $T = 4$  K en présence de diffusion spectrale. (a) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$ . Courbe rouge : décroissance exponentielle obtenue pour un temps de déclin  $T_1 = 391 \pm 7$  ps. (b) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$ . Courbe cyan : ajustement basé sur la convolution d'une distribution gaussienne de largeur  $\sigma = 6.4 \mu\text{eV}$  et d'une décroissance exponentielle avec un taux de déclin fixé à  $\gamma_2 = 1.7 \mu\text{eV}$ , permettant de décrire l'élargissement homogène de la raie excitonique en présence d'élargissement inhomogène [45].

Notons qu'il serait possible d'augmenter le signal FWM pour les délais longs en suivant temporellement l'écho avec la référence. De cette manière, le contraste des interférences spectrales entre le signal d'écho et la référence est constant en fonction de  $\tau_{12}$ . Cela revient à dire que l'écho ne se déplace plus dans la fenêtre temporelle du spectromètre. Pour chaque délai, le signal intégré correspond à la moitié de l'aire de la gaussienne (voir la figure 3.10).

Le signal FWM mesuré est alors uniquement proportionnel à la variation de l'amplitude de l'écho dont le déclin exponentiel correspond uniquement à la décohérence de l'exciton. Cela nécessite l'ajout d'une ligne à retard synchronisée avec le délai  $\tau_{12}$  sur le chemin de la référence.

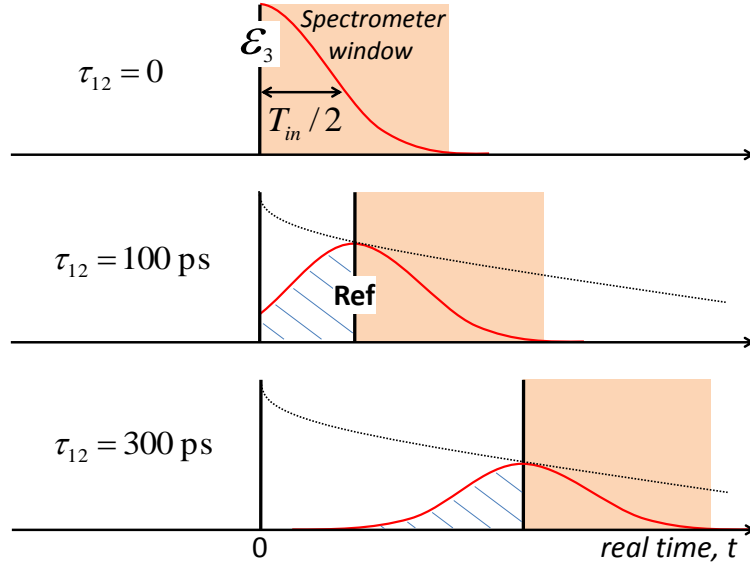


FIGURE 3.10 – Représentation schématique de l'écho de photon en fonction du temps pour trois délais  $\tau_{12}$ . En déplaçant la référence de  $t + \tau_{12}$ , la fenêtre temporelle du spectromètre suit le déplacement de l'écho. Le déclin du signal FWM n'est plus limité par la résolution temporelle du spectromètre. Pour chaque délai, le signal mesuré correspond à la demi-intégrale de l'écho. Le déclin du signal dépend donc uniquement du déclin de l'amplitude de l'écho, c'est-à-dire à l'élargissement homogène de la raie.

### 3.3 Mécanismes de décohérence d'un exciton unique

Dans les solides, les sources de déphasage sont omniprésentes. La cohérence optique d'un exciton est généralement limitée par d'autres processus que la recombinaison radiative. Dans cette partie nous allons nous intéresser aux mécanismes de déphasage, et plus particulièrement au rôle des phonons dans la décohérence d'excitons uniques.

#### 3.3.1 Déphasage pur d'un exciton unique

À basse température, l'interaction d'un exciton fortement confiné avec son environnement solide est faible, la décohérence de l'exciton résulte principalement de la relaxation de sa population par émission spontanée. Le déphasage de l'exciton est majoritairement radiatif, le temps de déclin de sa polarisation est alors plus long que celui de sa population, pouvant aller jusqu'à  $T_2 = 2T_1$  lorsque l'exciton est limité radiativement. Cependant, les processus de déphasage sont nombreux dans les solides, et bien souvent  $T_2 < T_1$ . Les principales sources de décohérence sont les suivantes :

1. La diffusion avec les phonons du réseau, à travers le couplage de Fröhlich avec les phonons optiques, à travers le potentiel de déformation et le couplage piézoélectrique avec les phonons acoustiques.

2. La diffusion élastique ou inélastique avec d'autres transitions excitoniques, i.e. exciton-exciton ou exciton-électron.

Pour prendre en compte ces processus de déphasage, nous introduisons le temps caractéristique de *déphasage pur*  $T_2^*$  dans l'équation de limite radiative 3.5, telle que :

$$\frac{1}{T_2} = \frac{1}{2T_1} + \frac{1}{T_2^*} \quad (3.7)$$

Quand le temps de déphasage pur est grand devant le temps de vie de l'exciton  $T_2^* \gg 2T_1$ , la contribution de l'environnement dans la décohérence de l'exciton est faible par rapport au déphasage radiatif. À l'inverse, quand  $T_2^* \leq 2T_1$ , l'interaction de l'exciton avec l'environnement est importante et détruit rapidement sa cohérence. Dans la suite de ce chapitre, nous allons nous intéresser plus particulièrement à l'impact des phonons acoustiques dans la décohérence d'un exciton unique fortement confiné.

### 3.3.2 Déphasage induit par les phonons acoustiques

#### 3.3.2.1 Phonons optiques et acoustiques

La création d'un exciton dans une BQ perturbe son environnement cristallin. À l'échelle microscopique, l'électron et le trou vont instantanément créer une attraction/répulsion Coulombienne sur les atomes avoisinants, créant une polarisation macroscopique. Durant une courte période (typiquement la picoseconde), les atomes de la maille cristalline vont se déplacer autour de leur position d'équilibre en libérant des quanta d'énergie de vibration appelés *phonons optiques*. L'interaction exciton-phonon optique crée un état habillé lumière-matière appelé le *polaron optique* (voir la figure 3.11 (a)). La constante de Fröhlich caractérise la force de ce couplage :

$$\alpha_F = \frac{e^2}{4\pi\hbar\epsilon_0} \sqrt{\frac{m_p^*}{2\hbar\omega_{LO}}} \left( \frac{1}{\epsilon_r(\infty)} - \frac{1}{\epsilon_r(0)} \right) \quad (3.8)$$

où  $m_p^*$  est la masse du polaron et  $\epsilon_r(\infty)$  et  $\epsilon_r(0)$  sont les constantes diélectriques à haute et basse fréquence. À basse température, cette constante vaut  $\alpha_F = 0.068$  dans GaAs. Les phonons optiques longitudinaux (LO) de grandes longueurs d'onde (faible  $k$ ) sont à l'origine de processus inélastiques couplant des états électroniques distants de  $\hbar\omega_{LO} \simeq 36$  meV (cf figure 3.12). La largeur spectrale des impulsions optiques ( $\Delta E \approx 10$  meV) ne permet pas de coupler une transition excitonique avec ces modes de vibration. Nous pouvons donc considérer que les phonons optiques jouent un rôle négligeable dans les processus de décohérence discutés ici.

À l'échelle mésoscopique, la création d'un exciton entraîne localement une expansion du cristal via une onde de déformation acoustique. Au même titre que les phonons optiques, cette interaction exciton-phonon acoustique crée un état habillé de la matière appelé le *polaron acoustique* (voir la figure 3.11 (b)). Les phonons acoustiques longitudinaux (LA) de grandes longueurs d'ondes correspondent à des ondes de compression et de dilatation dans le cristal. Ils conduisent à des processus quasi-élastiques mettant en jeu des énergies beaucoup plus petites que les phonons optiques, de l'ordre du meV. L'interaction entre les porteurs de charges et les phonons LA entraîne une modification de l'énergie des bandes de conduction et de valence, que l'on peut exprimer via le potentiel de déformation  $D_i$  pour

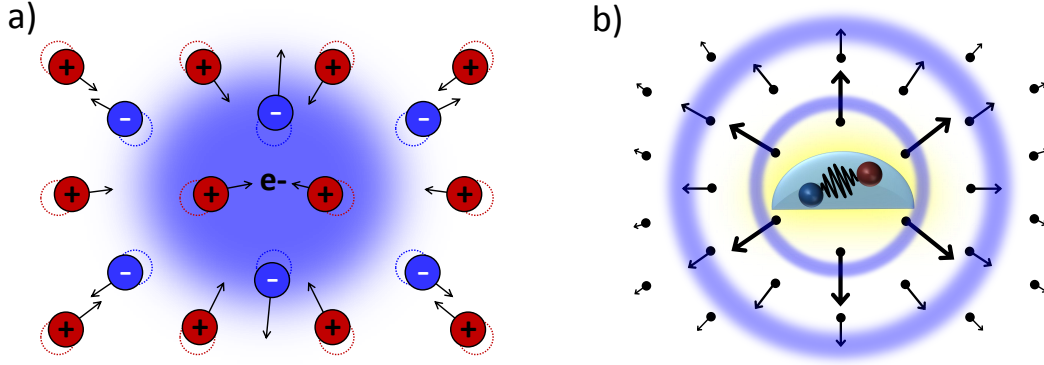


FIGURE 3.11 – Représentation schématique d'un polaron optique (a) et d'un polaron acoustique (b).

une bande  $i$  tel que :

$$\delta E_i = D_i \frac{\delta V}{V} \quad (3.9)$$

où  $\delta V$  est la variation locale du volume  $V$  engendrée par la vibration acoustique. Pour GaAs, le potentiel de déformation vaut  $D_c = -7.2$  eV pour les électrons et  $D_v = -1.2$  eV pour les trous.

Sous l'effet de la contrainte des phonons acoustiques, le matériau développe un moment électrique dont l'amplitude est proportionnelle à la force de la contrainte. Cela se traduit par une polarisation piézoélectrique :

$$P_{ij}^s = e_{ijk} \varepsilon_{jk} \quad (3.10)$$

où  $e_{ijk}$  sont les coefficients piézoélectrique du tenseur de contrainte  $\varepsilon_{jk}$ . À l'échelle d'une BQ unique, l'effet piézoélectrique est très faible devant la déformation des bandes électroniques [48]. Nous négligerons ce couplage dans la suite de ce chapitre.

La figure 3.12 présente une simulation des courbes de dispersion (traits solides) des modes de phonons dans GaAs. Notons que les modes transverses ne sont pas couplés par le potentiel de déformation puisqu'ils n'engendrent pas une variation du volume cristallin. Pour une taille typique de BQ InAs  $d \simeq 10$  nm, l'énergie des phonons LA qui se couplent efficacement à la BQ est comprise entre 1 et 2 meV (traits pointillés). La vitesse de propagation d'un phonon acoustique dans GaAs étant de l'ordre de  $c_s \simeq 5$  nm · ps<sup>-1</sup>, le temps que met l'onde acoustique pour quitter la BQ, i.e. la durée de vie du polaron acoustique, est de l'ordre de  $t_p \simeq 1$  ps.

### 3.3.2.2 Modèle de Boson indépendant

L'interaction d'un exciton avec les phonons acoustiques est décrite théoriquement par le modèle de *Boson indépendant* [49, 50, 51]. Ce modèle est une extension de la théorie de Huang-Rhys [52] développée pour décrire l'interaction électron-phonon dans le cadre d'électrons localisés. Il permet de décrire les phénomènes de relaxation en présence d'un bain de phonons. Ce modèle repose sur la diagonalisation d'un système constitué par un état discret, la raie zéro-phonon (ZPL) de l'exciton, couplé à un continuum de mode de phonons acoustiques, défini par l'Hamiltonien suivant :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_e + \mathcal{H}_{ph} + \mathcal{H}_{e-ph} \quad (3.11)$$

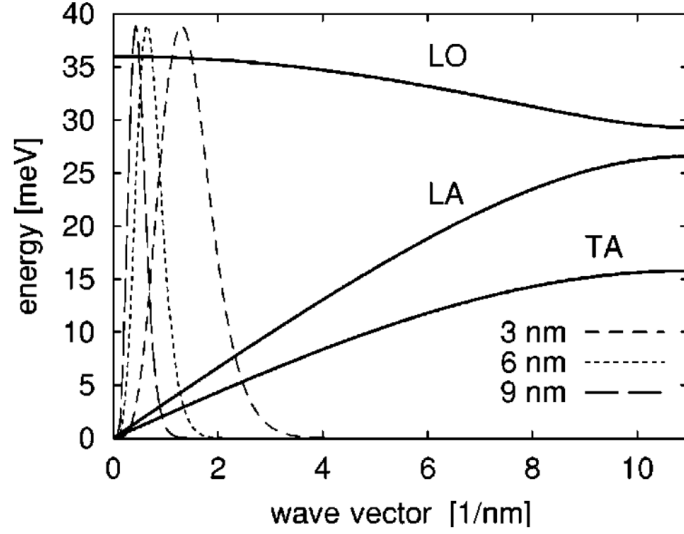


FIGURE 3.12 – Courbes de dispersion (traits solides) des phonons optiques et acoustiques dans GaAs, normalisées par un facteur de forme effectif, décrivant le couplage aux phonons (traits pointillés) pour différentes tailles de BQs (3, 6 et 9 nm). La gamme d'énergie des phonons LA qui se couplent efficacement augmente en diminuant la taille de la BQ. Les BQs étudiées dans ce chapitre, de taille typique  $d \simeq 10$  nm, correspondent à la zone de dispersion linéaire des phonons LA d'énergie  $E_{ph} \simeq 1 - 2$  meV. Figure extraite de la référence [49].

où  $\mathcal{H}_e$  est l'Hamiltonien électronique,  $\mathcal{H}_{ph}$  est l'Hamiltonien phononique et  $\mathcal{H}_{e-ph}$  représente l'interaction électron-phonon, telles que :

$$\mathcal{H}_e = \hbar\omega_0|j\rangle\langle j| \quad (3.12)$$

$$\mathcal{H}_{ph} = \sum_q \hbar\omega_q a_q^\dagger a_q \quad (3.13)$$

$$\mathcal{H}_{e-ph} = \sum_{i,j} \sum_q M_q^{ij} (a_q + a_{-q}^\dagger) |i\rangle\langle j| \quad (3.14)$$

où  $a_q^\dagger$  et  $a_q$  sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation d'un phonon, et  $M_q^{ij}$  est la matrice d'interaction électron-phonon telle que :

$$M_q^{ij} = D_c \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho_m c_s V}} \langle i | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | j \rangle \quad (3.15)$$

où  $D_c$  représente le potentiel de déformation de la bande de conduction,  $\rho_m$  est la masse volumique,  $c_s$  est la vitesse du son dans le cristal et  $V$  est un volume de quantification. La partie diagonale ( $i = j$ ) de cette matrice d'interaction conduit à un couplage linéaire avec les phonons acoustiques. Dans le cas d'une paire électron-trou (chacun dans l'état fondamental), les potentiels de déformation des électrons  $D_c$  et des trous  $D_v$ , étant de même signe, les deux contributions s'additionnent :

$$M_q = \sqrt{\frac{\hbar q}{2\rho_m c_s V}} (D_c \langle S_e | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | S_e \rangle + D_v \langle S_h | e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} | S_h \rangle) \quad (3.16)$$

où  $S_e$  et  $S_h$  correspondent respectivement aux couches  $S$  des électrons et des trous. Ce couplage linéaire permet d'expliquer les ailes de phonons autour de la ZPL, ainsi que le

déclin initial non-exponentiel de la polarisation [24, 50, 53], que nous allons voir dans la partie suivante.

Notons que pour l'instant nous considérons que les impulsions optiques sont suffisamment courtes par rapport aux mécanismes de déphasage pour être assimilées à des fonctions Dirac, i.e.  $E_i(t) = \mathcal{E}_i \delta(t - \tau_i)$ . Nous verrons dans la partie 3.3.2.6 la validité de cette hypothèse.

### 3.3.2.3 Ailes de phonons et polaron acoustique

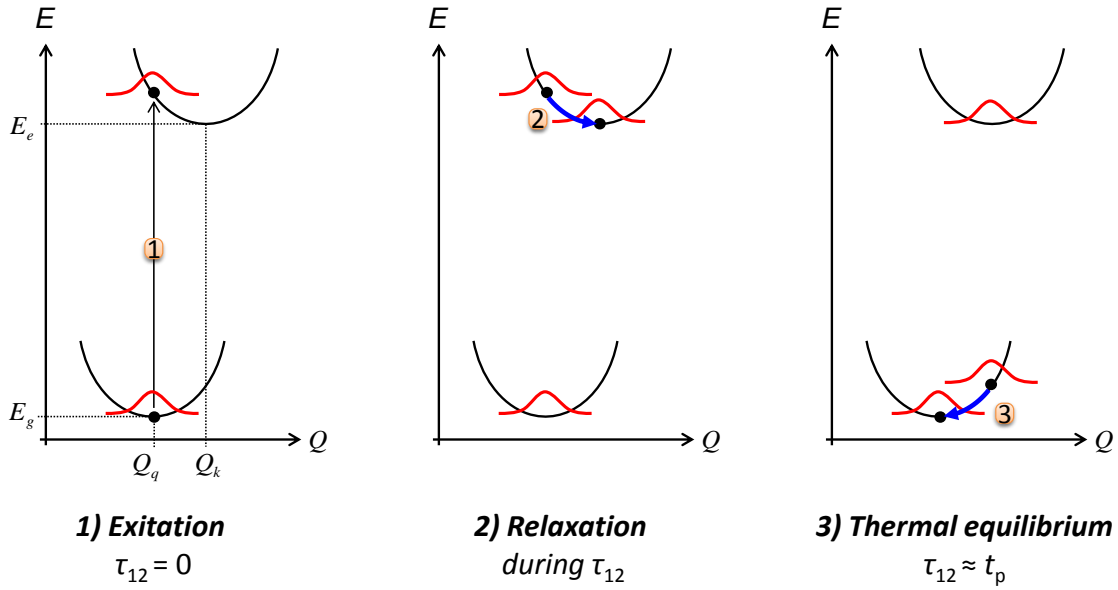


FIGURE 3.13 – Représentation schématique des potentiels d'énergie du niveau fondamental et excité couplés aux phonons acoustiques. La première étape représente la transition assistée par un photon d'énergie  $\Delta E + E_{ph}$  à  $\tau_{12} = 0$ . La deuxième étape représente la relaxation de l'état excité par les phonons acoustiques vers son état d'équilibre thermique (minimum du potentiel d'énergie) que l'on sonde en variant le délai  $\tau_{12}$  entre la pompe et la sonde. La troisième étape représente l'état excité à l'équilibre thermique ( $\tau_{12} \approx t_p$ ) et la recombinaison radiative de l'exciton assistée par la relaxation de l'état fondamental par les phonons acoustiques.

Le processus de relaxation avec les phonons acoustiques dans le cadre du modèle de Boson indépendant est représenté sur la figure 3.13. Dans ce modèle, les phonons sont décrits par des oscillateurs harmoniques, dont l'amortissement des oscillations conduit vers une position d'équilibre  $Q_q$  telle que :

$$Q_q = -\frac{M_q}{\omega_q} \sqrt{\frac{2\hbar}{\rho_m \omega_q}} \quad (3.17)$$

Les potentiels d'énergies des états électroniques de la BQ couplés aux modes de phonons sont décrits par des paraboles de courbure  $\omega_q^2$ . La parabole du bas représente l'état fondamental (sans exciton) couplé aux modes de phonons  $|g\rangle \otimes |\varphi_0\rangle$ . La position d'équilibre de cet état est donnée par la position d'équilibre des phonons  $Q_q \neq 0$  à l'équilibre thermique. La parabole du haut représente l'état excité (un exciton) couplé aux modes de

phonons  $|e\rangle \otimes |\varphi(t)\rangle$ . La position d'équilibre  $Q_k$  de cet état est légèrement différente de  $Q_q$ . Si l'exciton est couplé à un mode de phonon, le système correspond à un oscillateur harmonique, il n'y a pas d'amortissement au cours du temps. Dans la réalité, l'exciton se couple à une infinité de mode de phonons. La fonction d'onde de l'état excité est ainsi relaxée très efficacement vers son état d'équilibre thermique. À  $\tau_{12} = 0$  (étape 1), l'impulsion pompe crée un état cohérent  $|\psi(t)\rangle$  entre les deux niveaux tel que :

$$|\psi(t)\rangle = \alpha|\varphi_0\rangle \otimes |g\rangle + e^{i\omega_0 t}\beta|\varphi(t)\rangle \otimes |e\rangle \quad (3.18)$$

La polarisation de l'exciton couplé aux phonons correspond au recouvrement des deux fonctions d'ondes phononiques :

$$\mathcal{P} = \langle\psi(t)|\mu|\psi(t)\rangle \propto \mu\langle\varphi_0|\varphi(t)\rangle \quad (3.19)$$

Quand  $\tau_{12} = 0$ , les phonons n'ont pas encore relaxé la cohérence de l'état excité, le produit de recouvrement des fonctions d'ondes phononiques  $\langle\varphi_0|\varphi(t)\rangle$  est donc maximal, comme le montre la figure 3.14 (c). En augmentant  $\tau_{12}$ , le système relaxe progressivement vers son équilibre thermique en émettant des phonons acoustiques d'énergie  $E_{ph}$  (étape 2). Ce processus de relaxation se traduit par un déclin non-exponentiel du signal FWM ainsi que par l'apparition d'une bande latérale (ou aile) de phonons autour de la ZPL. La figure 3.14 (b) montre l'apparition de cette bande latérale à plus haute énergie en fonction du délai  $\tau_{12}$ . Au délai  $\tau_{12} = 0.5$  ps, on mesure une largeur spectrale d'environ 2 meV (cf figure 3.14 (a)). Sur cette gamme d'énergie, ce sont les BQs de taille  $d \simeq 10$  nm qui se couplent le plus efficacement aux phonons LA (voir figure 3.12), ce qui correspond à la taille typique de BQs étudiées (cf chapitre 2). Au fur et à mesure de la relaxation de l'état excité vers l'équilibre thermique, l'énergie des photons de recombinaison diminue, on observe l'apparition progressive d'une bande latérale à plus basse énergie, correspondant à la relaxation de l'état fondamental par les phonons acoustiques (étape 3). La disparition des ailes de phonons et du déclin initial non-exponentiel correspond au temps de vie du polaron acoustique  $t_p \simeq 1$  ps estimé précédemment (page 64). Le nombre de phonons acoustiques par mode est décrit par la distribution de Bose-Einstein :

$$N_q = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_q}{k_B T}} - 1} \quad (3.20)$$

En augmentant la température, le processus de relaxation via les modes de phonons acoustiques devient plus efficace. On observe alors une augmentation de l'amplitude du déclin initial de la ZPL, comme le montre la figure 3.14 (c). Pour quantifier ce déphasage, nous introduisons le poids  $Z$  défini comme étant l'aire de la ZPL dans le spectre d'absorption linéaire. Pour extraire le poids de la ZPL du signal FWM, nous utilisons l'équation 8 de la référence [54] qui exprime la polarisation FWM en fonction de la polarisation linéaire  $P_L(t)$  telle que :

$$P_{\text{FWM}}(t, \tau) = \frac{|P_L(t)|^2 [P_L^*(\tau)]^2}{P_L^*(t + \tau)} \quad (3.21)$$

L'amplitude du signal FWM est donc proportionnelle à  $\propto Z^3$ . On en déduit le poids de la ZPL pour les deux températures :  $Z_{4\text{K}} = 0.87$  et  $Z_{30\text{K}} = 0.7$ . En d'autres termes, 13 % de la cohérence optique de l'exciton sont relaxées par les phonons acoustiques à  $T = 4$  K, pour atteindre à 30 % à  $T = 30$  K. Ces valeurs sont comparables aux mesures sur ensembles [24, 53].

Quand  $\tau_{12} > t_p$ , le paquet d'onde de phonons acoustiques a quitté la BQ, les ailes de phonons disparaissent et la polarisation décroît exponentiellement avec l'émission radiative de l'exciton. Ce modèle est valable à basse température ( $T = 4$  K), dans la partie suivante nous allons voir l'effet de la température sur la décohérence de l'exciton provenant du couplage quadratique aux phonons acoustiques.

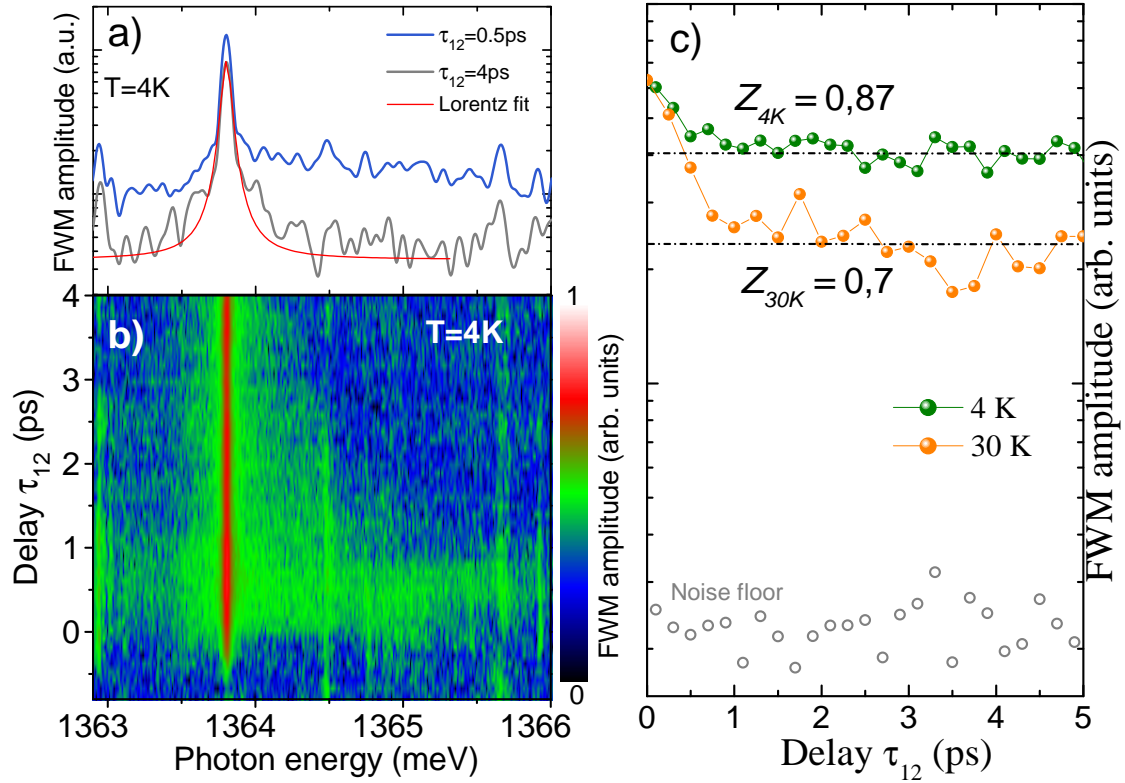


FIGURE 3.14 – **Déphasage d'un exciton unique induit par les phonons acoustiques : ailes de phonons et déclin initial non-exponentiel de la polarisation.** (a) Amplitude du signal FWM à  $\tau_{12} = 0.5$  ps (bleu) montrant la présence d'ailes de phonons acoustiques autour de la ZPL à basse température ( $T = 4$  K). Après un délai  $\tau_{12} = 4$  ps (gris), les ailes de phonons ont disparu, on retrouve une forme de raie lorentzienne comme le montre l'ajustement lorentzien (courbe rouge). La puissance de la pompe est choisie pour correspondre au régime linéaire d'excitation :  $P_1 = 50$  nW  $\Leftrightarrow \Theta_1 = \pi/5$ . (b) Spectre du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$ . On peut observer l'apparition à  $\tau_{12} = 0$ , puis la disparition progressive des ailes de phonons acoustiques en fonction du délai. L'amplitude du signal est donnée par l'échelle de couleur (échelle logarithmique). (c) Amplitude FWM de la ZPL en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour deux températures,  $T = 4$  K (vert) et  $T = 30$  K (orange). On observe le déclin initial non-exponentiel du signal FWM, qui augmente avec la température. Le temps de ce déclin correspond à la durée de vie du polaron acoustique  $t_p \approx 1$  ps. Le niveau de bruit est représenté par les cercles gris.

### 3.3.2.4 Couplage quadratique aux phonons acoustiques

Dans la partie précédente, nous avons mesuré le déclin initial non-exponentiel du signal FWM d'un exciton unique durant les premières picosecondes après l'excitation. Ce rapide déclin se traduit spectralement par des bandes latérales de phonons acoustiques autour de la ZPL. Le modèle de Boson indépendant permet d'expliquer ce couplage à travers les termes



diagonaux de la matrice d'interaction exciton-phonon. Mais ce modèle ne suffit pas pour expliquer l'élargissement homogène de la ZPL avec la température [53]. Cet élargissement rentre en jeu dans les termes non-diagonaux de la matrice d'interaction exciton-phonon (cf équation 3.15) qui conduisent à un couplage quadratique avec les phonons acoustiques [48]. L'interprétation physique de ce couplage correspond à l'absorption puis l'émission d'un phonon acoustique via une transition réelle ou virtuelle. Le niveau d'énergie le plus proche de l'état fondamental  $(1e^1)(2h^1)$  correspond à un électron sur la couche  $S$  et un trou sur la couche  $P$ . Pour une BQ InAs/GaAs, la différence d'énergie entre ces deux niveaux vaut environ 15 meV [55]. L'absorption d'un phonon acoustique d'énergie  $E_{ph} \approx 1 - 2$  meV ne permet pas d'atteindre cet état excité, et conduit à un niveau virtuel (cf figure 3.15). L'état excité  $(1e^1)(2h^1)$  est accessible au second ordre via l'absorption de plusieurs phonons, mais la probabilité de ce processus non-linéaire est très faible devant l'absorption au premier ordre. Nous négligerons cette transition.

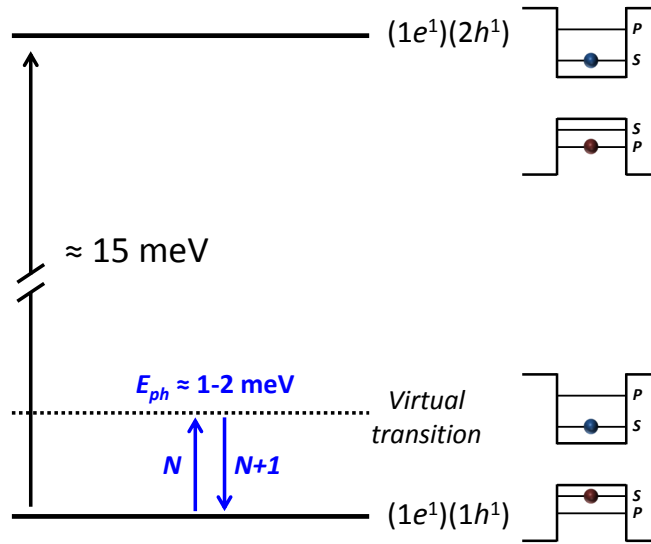


FIGURE 3.15 – Transition virtuelle assistée par l'absorption et l'émission d'un phonon acoustique.

La figure 3.16 (a) montre l'évolution du signal FWM d'un exciton unique en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour trois températures. Nous intégrons uniquement l'amplitude spectrale de la ZPL. A basse température, la cohérence de l'exciton est limitée par son temps de vie radiatif, dans le cas présent  $T_2 = 300$  ps à 5 K. En augmentant la température, le déphasage de l'exciton s'accélère. La polarisation de l'exciton suit une décroissance exponentielle avec un taux d'amortissement qui dépend de la température. A 30 K, le temps de cohérence de l'exciton a diminué d'un ordre de grandeur par rapport à 5 K. Ce déclin exponentiel se traduit spectralement par un élargissement homogène de la ZPL, visible spectralement à partir de 30 K, comme le montre la figure 3.16 (b). Notons que pour cet exciton, l'élargissement inhomogène est négligeable par rapport à l'élargissement homogène (pas d'écho de photon visible). Au-delà de 30 K, les temps de cohérence  $T_2$  atteignent un seuil correspondant à la limite expérimentale de notre dispositif de mesure (voir la figure 3.16 (c)).

La figure 3.17 présente l'évolution de la largeur homogène  $\gamma_2$  de la ZPL en fonction de la température pour deux BQs différentes. QD#1 correspond à la BQ présentée sur la figure 3.16. Chaque point représente une largeur de raie à mi-hauteur extraite à partir du déclin exponentiel du signal FWM ( $\gamma_2 = 2\hbar/T_2$ ). A basse température ( $T < 10$  K), l'énergie

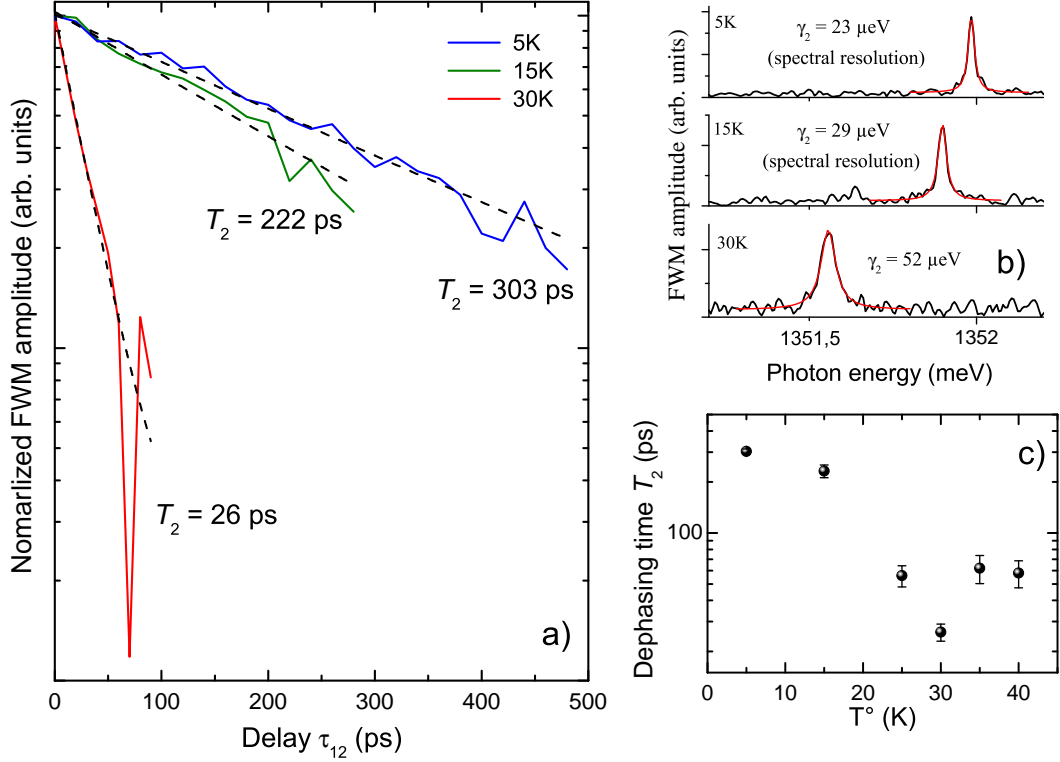


FIGURE 3.16 – **Élargissement de la ZPL via le couplage quadratique aux phonons acoustiques.** (a) Amplitude FWM normalisée en fonction de  $\tau_{12}$  d'un exciton en fonction de la température. Les traits pointillés représentent les ajustements exponentiels  $e^{-\tau_{12}/T_2}$  utilisés pour extraire les temps de décohérence  $T_2$  des trois températures 5 (bleu), 15 (vert) et 30 K (rouge). (b) Spectres FWM montrant l'élargissement de la ZPL en fonction de la température. Les traits rouges représentent les ajustements lorentzien utilisés pour extraire la largeur de raie homogène  $\gamma$ . (c) Évolution des temps de cohérence  $T_2$  en fonction de la température de 5 K à 40 K. Au-delà de 30 K, le SNR n'est plus suffisant pour extraire fidèlement  $T_2$ .

thermique est inférieure à l'énergie d'un phonon acoustique ( $k_B T < 1$  meV). Le processus d'absorption d'un phonon est pratiquement négligeable. Les largeurs homogènes mesurées correspondent au taux de déphasage à température nulle donné par le temps de vie radiatif de l'exciton. A partir de 15 K, l'énergie thermique devient comparable à celle d'un phonon acoustique et permet d'initier le processus absorption d'un phonon. Cela se traduit par l'élargissement homogène de la ZPL en  $N(N+1)$ , où  $N$  est le nombre de phonons défini par l'équation 3.20, autrement dit au processus d'absorption ( $N$ ) et d'émission ( $N+1$ ) d'un phonon. La courbe noire représente l'ajustement utilisé pour interpréter l'élargissement de la ZPL :

$$\gamma_2(T) = \gamma_0 + A \left[ \frac{1}{e^{\frac{E_{ph}}{k_B T}} - 1} + \left( \frac{1}{e^{\frac{E_{ph}}{k_B T}} - 1} \right)^2 \right] \quad (3.22)$$

où  $\gamma_0 = 4.5$   $\mu$ eV et  $A = 17$  meV sont des constantes d'ajustement, et  $E_{ph} = 1.5$  meV correspond à l'énergie moyenne d'un phonon acoustique. Cet ajustement nous permet d'extraire la température  $T_q = 17.4$  K correspondant à l'énergie d'activation du processus quadratique ( $k_B T_q = 1.5$  meV). Cette énergie d'activation correspond à l'énergie nécessaire

pour absorber un phonon acoustique. Quand l'énergie thermique est supérieure à cette énergie, l'ensemble des phonons acoustiques contribuent à l'élargissement homogène de la ZPL.

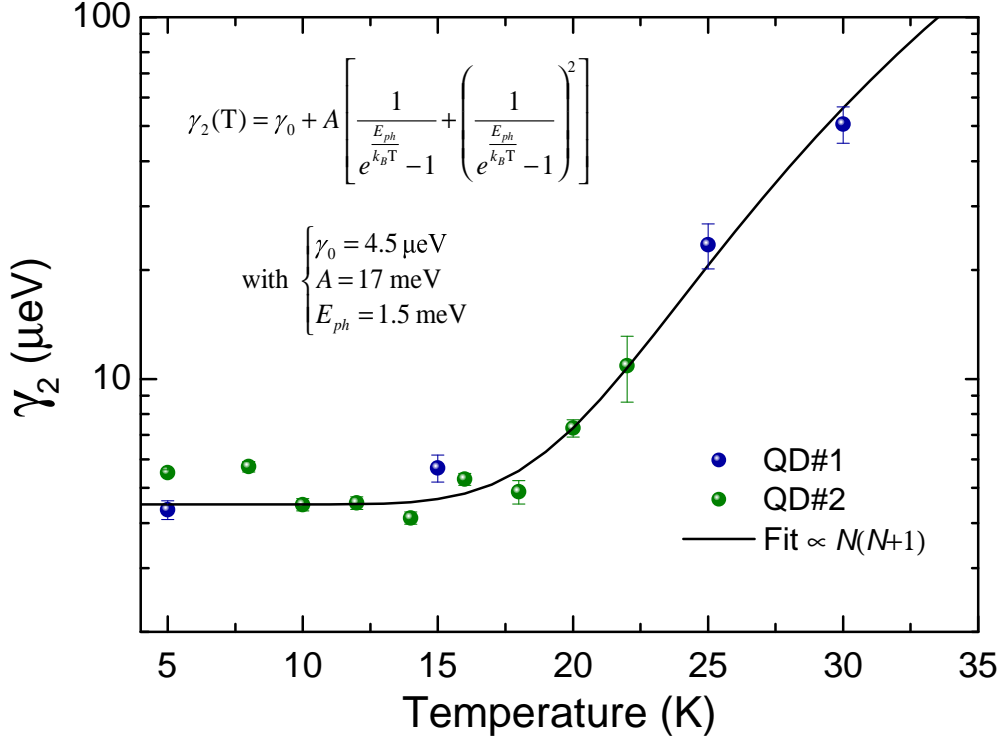


FIGURE 3.17 – Évolution de la largeur homogène  $\gamma_2$  en fonction de la température. Pour les deux BQs étudiées,  $\gamma_2$  est proportionnelle à  $N(N + 1)$  représentée par la courbe noire, où  $N$  est le nombre de phonons défini par l'équation 3.20.

Il est important de noter que les BQs étudiées ici ne présentent pas d'élargissement inhomogène mesurable. Nous allons voir dans la partie suivante, que l'effet de la diffusion spectrale n'est pas négligeable lors de ce type de mesure.

### 3.3.2.5 Élargissement inhomogène de la ZPL

Intéressons nous maintenant à l'effet de la température sur l'élargissement inhomogène de la ZPL. Les figures 3.18 (a-c) montrent le déclin du signal FWM d'un exciton en présence de diffusion spectrale pour trois températures. À  $T = 6$  K, le déclin des cohérences est principalement radiatif ( $\gamma_2 = 1.2 \mu\text{eV}$ ), et présente un écho de photon large temporellement, de largeur spectrale  $\sigma = 3 \mu\text{eV}$ . La vitesse des fluctuations spectrales dépend du temps de capture et de fuite des charges dans les pièges environnants de la BQ. A basse température, ces deux processus sont activés thermiquement par les phonons acoustiques. Le processus de capture est activé par l'émission d'un phonon acoustique avec une efficacité proportionnelle à  $N + 1$ . Le processus de fuite est, quand à lui, activé par l'absorption d'un phonon acoustique avec une efficacité proportionnelle à  $N$ . À basse température, le nombre de phonons acoustiques est faible, le processus de capture est beaucoup plus efficace que celui de fuite [56]. La majorité des pièges environnants sont donc remplis d'électrons, et les fluctuations électrostatiques de l'environnement sont alors faibles, voire négligeables. Dans nos mesures, cela se traduit par un écho de photon large temporellement comme le montre la figure 3.18 (a). À mesure que la température augmente, le nombre de phonons

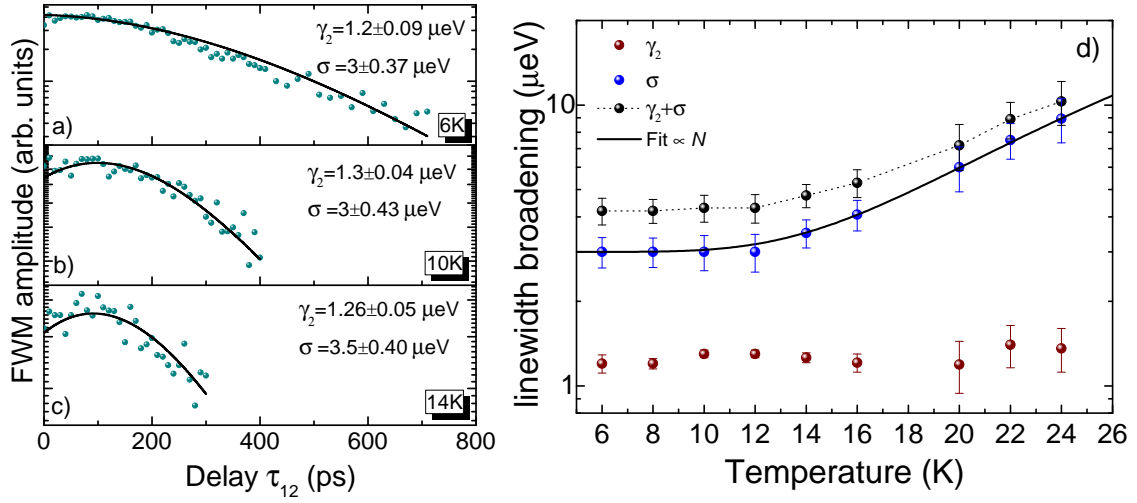


FIGURE 3.18 – **Évolution de la largeur inhomogène  $\sigma$  en fonction de la température.** (a)-(c) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour 6, 10 et 14 K. Nous utilisons le modèle d’Erland [45] représenté par les courbes noires pour extraire la largeur homogène  $\gamma_2$  et inhomogène  $\sigma$  de la ZPL (détails dans la partie 3.2.2). (d) Évolution de la largeur homogène (rouge) et inhomogène (bleu) en fonction de la température. L’élargissement inhomogène de la ZPL est proportionnel au nombre de phonons  $N$  représenté par la courbe noire.

acoustiques augmente et favorise le dépiégeage des charges via l’absorption de phonons acoustiques. La diffusion spectrale augmente et se traduit par une diminution progressive de la largeur temporelle de l’écho (cf figures 3.18 (b,c)). On observe une augmentation de la largeur inhomogène  $\sigma$  proportionnelle à  $N$ , comme le montre la figure 3.18 (d), telle que :

$$\sigma(T) = \sigma_0 + A \left[ \frac{1}{e^{\frac{\Delta E}{k_B T}} - 1} \right] \quad (3.23)$$

où  $\sigma_0 = 3 \mu\text{eV}$  et  $A = 170 \mu\text{eV}$  sont des constantes d’ajustement, et  $\Delta E = 7 \text{ meV}$  correspond à l’énergie moyenne de dépiégeage. Cette énergie est supérieure à l’énergie caractéristique des phonons acoustiques précédemment mesurée pour ce type de BQ. De plus, sur la gamme de températures mesurées, nous n’observons pas d’élargissement homogène de la raie. La taille de cette BQ est probablement plus petite que la taille typique des BQs de l’échantillon. L’énergie thermique d’activation nécessaire pour coupler efficacement cette BQ aux modes de phonons LA serait alors plus élevée (cf figure 3.12). Cependant, à partir de 20 K, l’erreur sur la mesure de  $\gamma_2$  augmente car le signal d’écho limite la mesure du déclin exponentiel de la polarisation aux délais longs. Il n’est donc plus possible d’extraire fidèlement  $\gamma_2$ , et par conséquent de vérifier cette hypothèse. Notons que d’autres processus de dépiégeage, comme la diffusion électron-électron par exemple, peuvent également être responsable de l’élargissement inhomogène de la ZPL.

Ce résultat montre que la diffusion spectrale limite nos mesures de largeur homogène, et s’avère d’autant plus limitant à mesure que la température augmente. L’ajout d’une ligne à retard sur le chemin de la référence permettrait de scanner le signal d’écho pour un délai  $\tau_{12}$  fixe, et permettrait d’observer directement l’élargissement inhomogène en fonction de la température (cf partie 3.2.2).

### 3.3.2.6 Déphasage induit par les phonons pendant l'excitation

Jusqu'à présent, nous avons considéré des impulsions optiques infiniment courtes temporellement, i.e.  $E_i(t) = \mathcal{E}_i \delta(t - \tau_i)$ . Dans cette partie nous allons nous intéresser au déphasage de l'exciton pendant la durée de l'impulsion ( $\Delta t \approx 150$  fs). Dans la partie 3.1.1, nous avons vu que l'interaction lumière-matière d'un exciton avec une impulsion optique résonante se traduit par des oscillations de Rabi du signal FWM qui s'amortissent à mesure que la puissance du laser augmente. Observé depuis une dizaine d'années [44, 57], l'origine de cet amortissement, connu sous le nom de déphasage induit par l'excitation (EID), a fait l'objet de nombreux débats. Trois mécanismes possibles ont émergé : l'excitation non-résonante de la couche de mouillage [58], l'excitation de transitions multi-excitoniques [34] et le couplage aux phonons acoustiques [59].

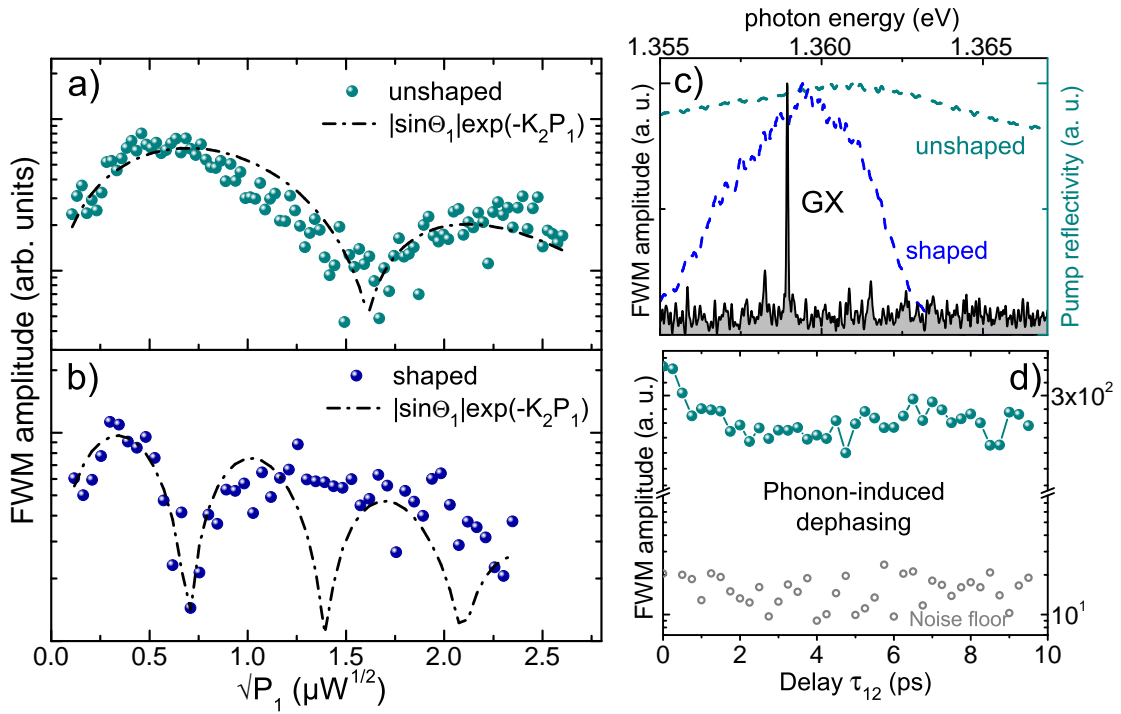


FIGURE 3.19 – Amortissement des oscillations de Rabi d'un exciton unique. (a)-(b) Amplitude du signal FWM mesurée en fonction de la puissance d'excitation  $\sqrt{P_1}$ , pour  $\Theta_2 = \pi$  et  $\tau_{12} = 0.5$  ps. Sans filtrage spectrale (cyan), la largeur temporelle de l'impulsion vaut  $\Delta t = 240$  fs. Avec filtrage spectral (bleu foncé)  $\Delta t = 520$  fs. Les oscillations de Rabi s'amortissent exponentiellement avec  $\Gamma_2 \propto K_2 P_1$  (traits pointillés noirs). Au delà de la fréquence de coupure des phonons acoustiques, obtenue pour  $\Theta_1 > 3\pi/2$ , les cohérences de l'exciton atteignent un plateau. (c) Spectres de la transition excitonique (GX) et de la réflectivité de la pompe. Bleu foncé (cyan) : filtré (non filtré). (d) Déclin initial non-exponentiel du signal FWM de la ZPL caractéristique du déphasage induit par les phonons acoustiques en fonction de  $\tau_{12}$ . Le niveau de bruit est représenté par les cercles gris.

Le premier mécanisme attribue l'amortissement des oscillations de Rabi au déphasage induit par l'excitation non-résonante d'un état hybride composé d'une charge dans la couche de mouillage liée par énergie Coulombienne à une charge confinée dans la BQ. Dans le cas d'une excitation résonante ( $\approx 1.36$  eV), l'énergie de la couche de mouillage ( $\approx 1.47$  eV) est suffisamment éloignée pour pouvoir négliger ce processus. Le deuxième mécanisme d'amortissement est causé par l'excitation d'autres transitions excitoniques

couvertes spectralement par les impulsions. Pour négliger ce mécanisme, nous avons choisi une transition excitonique isolée (GX), comme le montre la figure 3.19 (c). Enfin, le dernier mécanisme EID concerne le déphasage induit par les phonons acoustiques. Dans ce modèle, le laser d'excitation module l'état électronique de la BQ à la fréquence de Rabi, et couple les vibrations du réseau via les potentiels de déformation des bandes de conduction et de valence (cf partie 3.3.2.3). La figure 3.19 (d) montre le déclin initial non-exponentiel du signal FWM de l'exciton caractéristique de la formation d'un polaron acoustique. Un échange résonant d'énergie se produit entre la polarisation électronique de la BQ et les modes de phonons LA, à une vitesse proportionnelle à la réponse fréquentielle du bain de phonons. Ce mécanisme dissipe rapidement la phase de l'exciton vers un espace de phase considérable de modes de phonons. Lorsque la puissance du laser est suffisamment intense, le polaron acoustique se met à osciller à la fréquence de Rabi  $\Omega_R$ , et se traduit par l'apparition de branches de polaritons<sup>1</sup> à haute (UPB) et basse (LPB) énergie (cf figure 3.20). La différence d'énergie entre les deux branches correspond à  $\hbar\Omega_R$ .

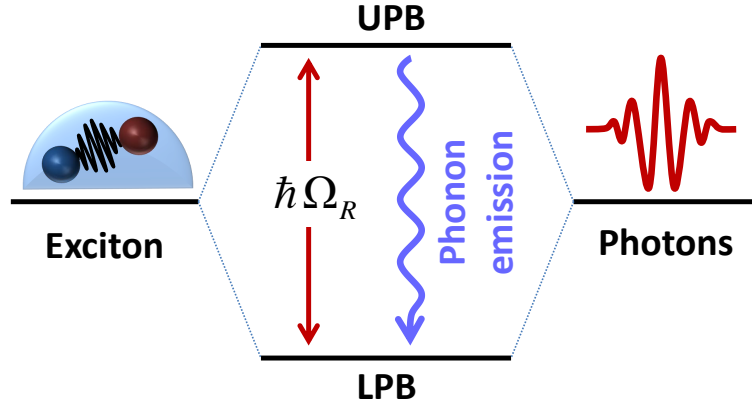


FIGURE 3.20 – Représentation schématique du couplage fort laser-exciton-phonon donnant lieu à des branches de polaritons haute (UPB) et basse (LPB) dans le cas où  $\hbar\Omega_R \leq E_{ph}$ .

Ce mécanisme a été identifié comme le processus dominant dans l'amortissement des oscillations de Rabi d'un exciton pour une excitation résonante [59]. Le taux d'amortissement des oscillations est proportionnel à la puissance d'excitation et à la température. Il est défini par  $\Gamma_2 = K_2\Omega_R^2 \propto K_2P$ , où  $\Gamma_2$  représente le taux de déphasage pur pendant l'excitation, et  $K_2$  est une constante de temps caractéristique de l'EID qui dépend linéairement de la température telle que :

$$K_2 = \frac{(D_c - D_v)^2}{4\pi\rho_m c_s^5 \hbar^2} k_B T \equiv AT \quad (3.24)$$

où  $\rho_m = 5.37 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  est la masse volumique de GaAs,  $c_s = 5.11 \text{ nm} \cdot \text{ps}^{-1}$  est la vitesse du son et  $D_c = -7.2 \text{ eV}$  ( $D_v = 1.2 \text{ eV}$ ) représente le potentiel de déformation de la bande de conduction (valence). On trouve une valeur théorique de l'amortissement  $A_{\text{calc}} = 9.8 \pm 0.9 \text{ fs} \cdot \text{K}^{-1}$ . À basse puissance ( $\Theta_1 < 3\pi/2$ ), les oscillations s'amortissent exponentiellement en fonction de la puissance de la pompe  $\propto |\sin \Theta_1| e^{-K_2 P_1}$ , comme le montre les figures 3.19 (a,b). Dans ce régime d'excitation, on mesure un temps d'amortissement  $K_2^{\text{mes}} = 50 \pm 5 \text{ fs}$  à  $T = 5 \text{ K}$ . On en déduit  $A_{\text{mes}} = 10 \pm 1 \text{ fs} \cdot \text{K}^{-1}$ , en parfait accord

1. Les polaritons sont des quasi-particules issues du couplage fort entre une onde lumineuse et une onde de polarisation électrique, dans notre cas un exciton.

avec la valeur calculée et avec de précédentes mesures de photo-courant réalisées sur des BQs InGaAs/GaAs [59].

Cependant, ce modèle ne permet pas d'expliquer l'amortissement des oscillations au-delà de l'énergie de coupure des phonons acoustiques, i.e. quand  $\hbar\Omega_R > E_{ph}$ . À partir de  $\Theta_1 > 3\pi/2$  ( $\hbar\Omega_R = 3.1$  meV), la différence d'énergie entre les deux branches de polaritons devient plus grande que l'énergie moyenne des phonons acoustiques couplés à la BQ. Cette hypothèse est vraie au maximum d'intensité de l'impulsion, lorsque l'écart d'énergie entre les deux branches de polaritons est maximal. Étant donné que les impulsions sont gaussiennes (cf chapitre 2), l'énergie ressentie par la BQ varie temporellement au passage de l'impulsion, et le découplage aux phonons n'est pas total. Autrement dit, la différence d'énergie entre les deux branches de polaritons augmente puis diminue adiabatiquement pendant la durée de l'impulsion (cf figure 3.21). Une transition assistée par l'émission d'un phonon entre les deux branches de polaritons est possible pour certaines énergies et pas d'autres. La compétition entre ces deux processus se traduit par un plateau dans le signal FWM comme le montre la figure 3.19 (b). Le dispositif expérimental empêche les mesures au-delà de  $5 \mu\text{W}$  pour la pompe.

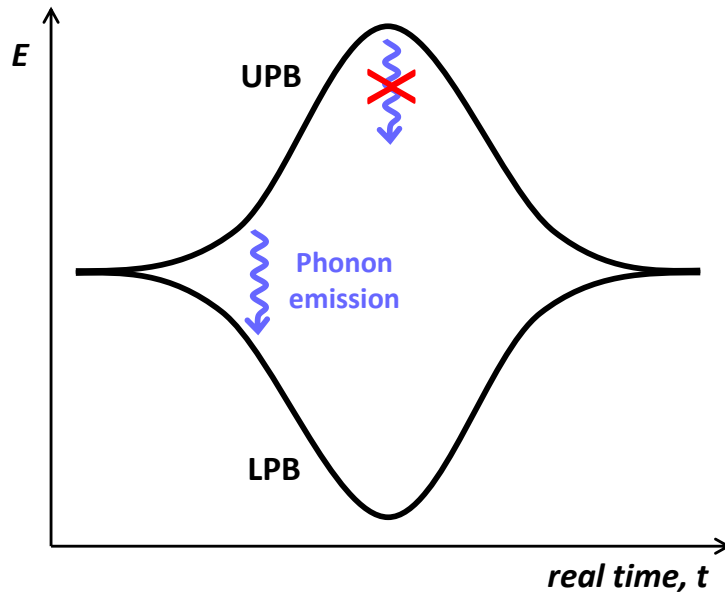


FIGURE 3.21 – Représentation schématique de l'évolution adiabatique de l'énergie des branches de polaritons au passage de l'impulsion. L'émission d'un phonon acoustique n'est possible que pour les énergies inférieures à l'énergie de coupure des phonons acoustiques.

### 3.3.3 Dynamique spectrale des phonons acoustiques : cavité phononique ?

Pendant la durée de vie du polaron acoustique, les bandes latérales autour de la ZPL résultent de l'émission de phonons acoustiques dont l'énergie varie selon la taille de la BQ (cf figure 3.12). Après la formation du polaron, l'onde acoustique de déformation quitte la BQ. Spectralement on observe alors la disparition des ailes de phonons, et temporellement le déclin exponentiel de la ZPL caractéristique du déphasage radiatif de l'exciton. Cependant, plusieurs propositions théoriques [60, 61, 62] ont montré que le paquet d'onde de phonons acoustiques peut réaffecter la polarisation de la BQ en se réfléchissant sur une interface suffisamment proche ( $d < 10$  nm) ou affecter la polarisation d'une autre BQ proche

spatialement ( $d < 20$  nm) via la transition biexcitonique. Un changement de la polarisation de l'exciton neutre (GX) ou du biexciton neutre (XB) est directement visible dans le signal FWM d'une BQ à condition que le niveau de signal soit suffisamment grand [63]. Pour éviter toute confusion entre ces deux processus, nous avons excité l'échantillon avec une polarisation circulaire, afin de ne pas exciter la transition XB (voir le chapitre 4 pour plus de détails). Le deuxième processus est donc négligeable ici.

La figure 3.22 (a) présente le signal FWM de deux transitions excitoniques neutres  $GX_1$  et  $GX_2$  en fonction du délai  $\tau_{12}$ . Pendant la première picoseconde après l'excitation, on observe le déclin initial non-exponentiel du signal FWM (cf figure 3.22 (c)) et les bandes latérales (cf figure 3.22 (b)) caractéristiques de la formation d'un polaron acoustique. Étonnamment, les ailes de phonons ne disparaissent pas après la formation du polaron, mais oscillent spectralement durant plusieurs picosecondes. Regardons de plus près ces oscillations. La figure 3.22 (d) montre l'évolution des bandes latérales en fonction de  $\tau_{12}$ , intégrées sur une gamme spectrale de 0.4 meV autour des deux transitions.

Premièrement, on remarque que ces oscillations sont périodiques, et que les bandes à haute énergie oscillent en opposition de phase avec celles à basse énergie. Cette première observation traduit un échange d'énergie via l'onde de déformation. Quand la BQ libère des phonons, on observe une bande à plus haute énergie, et quand la BQ absorbe des phonons, une bande apparaît à plus basse énergie. Autrement dit, la BQ libère de l'énergie quand elle est comprimée via l'onde de déformation et en absorbe quand elle est étirée.

Deuxièmement, on remarque que la période des oscillations pour  $GX_2$  ( $\approx 2$  ps) est deux fois plus rapide que celle pour  $GX_1$  ( $\approx 4$  ps). Cette période est directement liée à la distance  $d$  que parcourt l'onde de déformation acoustique dans le matériau. Dans le cas d'une réflexion de l'onde sur une interface, cette distance correspond à deux fois la distance  $d$  entre la BQ et l'interface (aller/retour de l'onde acoustique). Dans InAs, la vitesse de l'onde acoustique ( $c_s \approx 5$  nm  $\cdot$  ps $^{-1}$ ) implique des distances de propagation d'environ 20 nm pour  $GX_1$  et 10 nm pour  $GX_2$ . Ces distances correspondent aux diamètres moyens des BQs étudiées. Autrement dit, une partie de l'onde acoustique générée lors de l'excitation est réfléchiée à l'interface InAs/GaAs et réaffecte la polarisation de la BQ.

Troisièmement, on remarque que l'amplitude du signal FWM de  $GX_1$  est plus élevée que pour  $GX_2$ . Or, la force d'oscillateur d'une BQ augmente avec sa taille. Sous la condition que les deux BQs reçoivent la même puissance d'excitation, ce troisième indice confirme l'observation précédente ( $GX_1$  plus grand que  $GX_2$ ) et conforte l'hypothèse d'une réflexion de l'onde acoustique à l'interface InAs/GaAs.

Des travaux théoriques sont actuellement en cours pour valider cette hypothèse. *Ces résultats préliminaires pourraient constituer la première preuve expérimentale de la modification de la polarisation d'une BQ unique au passage d'une onde de déformation acoustique.*



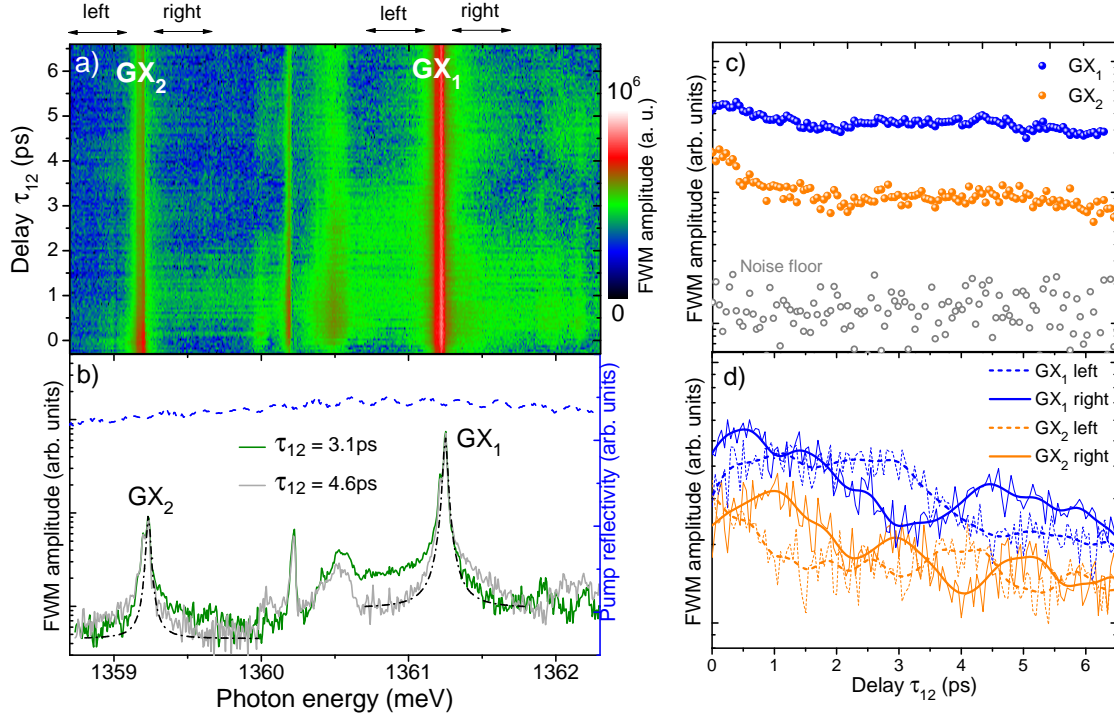


FIGURE 3.22 – **Oscillations des ailes de phonons acoustiques.** (a) Amplitude du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour une excitation circulaire. La puissance de la pompe correspond au régime linéaire d'excitation  $P_1 = 100$  nW. Chaque délai représente un spectre, le temps d'intégration par spectre est d'environ 3 min et le délai entre chaque spectre est de 50 fs. On observe des oscillations spectrales des ailes de phonons autour de deux transitions excitoniques, qui perdurent après la formation du polaron acoustique. (b) Spectres FWM pour  $\tau_{12} = 3.1$  ps (vert) et  $\tau_{12} = 4.6$  ps (gris), montrant la présence de bandes latérales à basse et à haute énergie résultant de l'émission et de l'absorption de phonons acoustiques. Les transitions GX<sub>1</sub> et GX<sub>2</sub> sont ajustées par des pics lorentzien (traits pointillés noirs). On trouve des largeurs à mi-hauteur d'environ  $30 \mu\text{eV}$  (limite de résolution). Le spectre de réflectivité de la pompe est représenté par les traits pointillés bleus. (c) Amplitude du signal FWM de GX<sub>1</sub> (bleu) et GX<sub>2</sub> (orange) en fonction du délai  $\tau_{12}$ . On observe le déclin initial non-exponentiel du signal FWM durant la première picoseconde caractéristique de la formation du polaron acoustique. Notons que ce déclin est plus prononcé pour GX<sub>2</sub>. Le niveau de bruit est représenté par les cercles gris. (d) Amplitude du signal FWM des bandes latérales de phonons autour de GX<sub>1</sub> (bleu) et GX<sub>2</sub> (orange). Les traits solides (pointillés) représentent les bandes latérales à haute (basse) énergie intégrées sur  $\Delta E = 0.4$  meV autour des transitions (cf flèches sur la figure a)). Pour les deux transitions, on observe des oscillations périodiques et en opposition de phase, avec une période d'oscillation deux fois plus rapide pour GX<sub>2</sub>. Un filtre FFT a été appliqué pour lisser les variations rapides.

### 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la réponse FWM d'émetteurs solides individuels, tels que des excitons confinés dans des BQs InAs/GaAs. Nous avons montré qu'il est possible de contrôler optiquement l'état quantique d'un exciton en utilisant des impulsions optiques résonantes, et de mesurer son temps de vie  $T_1$  et de cohérence  $T_2$  en mesurant le déclin exponentiel du signal FWM, et ceux même en présence de diffusion spectrale. Des mesures en température nous ont ensuite permis de mettre en évidence les mécanismes de déphasage pur responsables de l'amortissement des oscillations de Rabi assistées par phonons, du déclin initial non-exponentiel du signal FWM pendant la formation du polaron et de l'élargissement homogène de la ZPL via le couplage quadratique aux phonons, dans la limite où l'élargissement inhomogène est faible. L'ajout d'une ligne à retard sur le chemin de la référence permettrait de lever cette limitation. Enfin, des mesures de dynamique spectrale du signal FWM ont mis en évidence l'oscillation spectrale des ailes de phonons après la formation du polaron, prédit théoriquement par l'émission et l'absorption de phonons acoustiques par la BQ. Les périodes d'oscillations mesurées sur deux BQs correspondent aux tailles typiques des BQs InAs/GaAs étudiées, ainsi qu'aux prédictions théoriques. Des simulations théoriques sont actuellement en cours pour valider ces observations.

## Chapitre 4

# Dynamiques et couplages cohérents de complexes excitoniques

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>80</b>
<b>4.2</b>	<b>Réponse cohérente d'un système exciton-biexciton</b>	<b>80</b>
4.2.1	Matrice densité d'un système exciton-biexciton	80
4.2.2	Classification des battements quantiques	83
4.2.3	Dynamiques des cohérences en fonction de la polarisation	86
4.2.4	Dynamiques des populations en fonction de la polarisation	89
<b>4.3</b>	<b>Spectroscopie 2D-FWM d'une BQ à fluctuation de charge</b>	<b>91</b>
4.3.1	Interprétation des états chargés	91
4.3.2	Couplages cohérents via 2D-FWM	93
4.3.3	Dépendance du couplage en fonction de la puissance d'excitation	95
<b>4.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>96</b>

---

Ce chapitre est consacré à l'étude des dynamiques de cohérence et de population de complexes excitoniques dans des BQs individuelles révélées par des mesures de spectroscopie FWM à trois faisceaux résolus en polarisation. Nous verrons dans un premier temps que les dynamiques d'un système exciton-biexciton sont gouvernées par l'énergie de structure fine de l'exciton et par l'énergie de liaison du biexciton, parfaitement décrites quantitativement par des calculs analytiques. Plus précisément nous verrons que la polarisation et l'aire des impulsions permettent d'accéder aux différentes transitions de ce système à quatre niveaux ( $4\mathcal{LS}$ ), donnant lieu à des battements quantiques entre les différents niveaux d'énergie qui le composent. En seconde partie, nous présenterons des mesures de spectroscopie bidimensionnelle (2D) FWM permettant de révéler les mécanismes de couplage cohérent d'un système exciton-biexciton et d'identifier une variété d'états excitoniques chargés dans une BQ à fluctuation de charge. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [64].

## 4.1 Introduction

Une compréhension globale des complexes excitoniques et leurs transitions optiques dans les BQs semiconductrices est une étape cruciale dans la réalisation de *qubits* solides pour les technologies de l'informatique quantique [65, 66, 67]. Par exemple, pour contrôler des BQs de manière cohérente et ultra-rapide, il est essentiel de connaître de temps de vie  $T_1$  et le temps de cohérence  $T_2$  de l'exciton et du biexciton [68, 69, 70]. Par ailleurs, ce type de système présente un intérêt grandissant en cryptographie quantique pour réaliser des paires de photons intriqués en polarisation [71, 72, 73, 74]. La séparation de structure fine  $\delta$  des niveaux d'énergie de l'exciton et l'énergie de liaison du biexciton  $\Delta_b$  jouent un rôle important pour réaliser ces paires de photons. Dans ce cas, l'angle de polarisation de l'excitation par rapport aux axes de la BQ permet d'adresser sélectivement les différentes transitions [75]. Dans la partie 4.2, nous allons voir qu'il est possible d'accéder à toutes ces quantités, i.e.  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $\delta$  et  $\Delta_b$ , pour une BQ unique avec le dispositif de FWM hétérodyne à trois faisceaux résolu en polarisation (cf chapitre 2). Pour modéliser les mesures, nous utilisons le formalisme de matrice densité (cf chapitre 1) appliqué à un  $4\mathcal{LS}$  en interaction avec trois impulsions optiques. Les simulations présentées dans ce chapitre ont été réalisées par D. Wigger, D. Reiter et T. Kuhn (Université de Münster) en se basant sur les références [50, 76]. Nous présenterons ensuite dans la partie 4.3, des mesures de spectroscopie 2D-FWM révélant le couplage exciton-biexciton à travers l'apparition d'un pic hors diagonal couplant la résonance de premier-ordre à celle de troisième ordre [13, 77, 78]. Enfin, nous verrons que la spectroscopie 2D-FWM est un outil puissant pour identifier rapidement les états chargés d'une BQ à fluctuation de charge.

## 4.2 Réponse cohérente d'un système exciton-biexciton

### 4.2.1 Matrice densité d'un système exciton-biexciton

Dans un premier temps, nous nous limitons à l'étude de l'exciton neutre de la couche  $S$ . Selon la polarisation des impulsions excitatrices, des états excitoniques de différentes polarisations sont excités. Pour une polarisation circulaire, que l'on notera  $\odot$  et  $\ominus$ , le système est caractérisé par l'état fondamental  $|G\rangle$ , deux états excitoniques  $|\sigma^+\rangle$  et  $|\sigma^-\rangle$ , et un état biexcitonique  $|B\rangle$ , comme le montre la figure 4.1 (a). L'Hamiltonien de ce système s'écrit de la manière suivante :

$$\mathcal{H} = \sum_{\nu} \hbar\omega_{\nu} |\nu\rangle\langle\nu| - \sum_{\nu,\nu'} \hbar M_{\nu,\nu'} |\nu\rangle\langle\nu'| + \mathcal{H}_{\text{exc}} \quad (4.1)$$

où les états  $|\nu\rangle \in |G\rangle, |\sigma^+\rangle, |\sigma^-\rangle, |B\rangle$  dans la base circulaire, avec pour énergie  $\hbar\omega_{\nu}$  telles que  $\hbar\omega_G = 0$ ,  $\hbar\omega_{\sigma^-} = \hbar\omega_{\sigma^+} = \hbar\omega_{\sigma}$  et  $\hbar\omega_B = 2\hbar\omega_{\sigma} - \Delta_b$ .

$\mathcal{H}_{\text{exc}}$  représente l'Hamiltonien d'interaction décrivant l'échange Coulombien entre les deux niveaux excitoniques tel que :

$$\mathcal{H}_{\text{exc}} = \frac{\delta}{2} (|\sigma^-\rangle\langle\sigma^+| + |\sigma^+\rangle\langle\sigma^-|) \quad (4.2)$$

La matrice d'interaction  $M_{\nu,\nu'}$  décrit les transitions permises telle que :

$$M = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{\sigma^+}^* & \Omega_{\sigma^-}^* & 0 \\ \Omega_{\sigma^+} & 0 & 0 & \Omega_{\sigma^-}^* \\ \Omega_{\sigma^-} & 0 & 0 & \Omega_{\sigma^+}^* \\ 0 & \Omega_{\sigma^-} & \Omega_{\sigma^+} & 0 \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

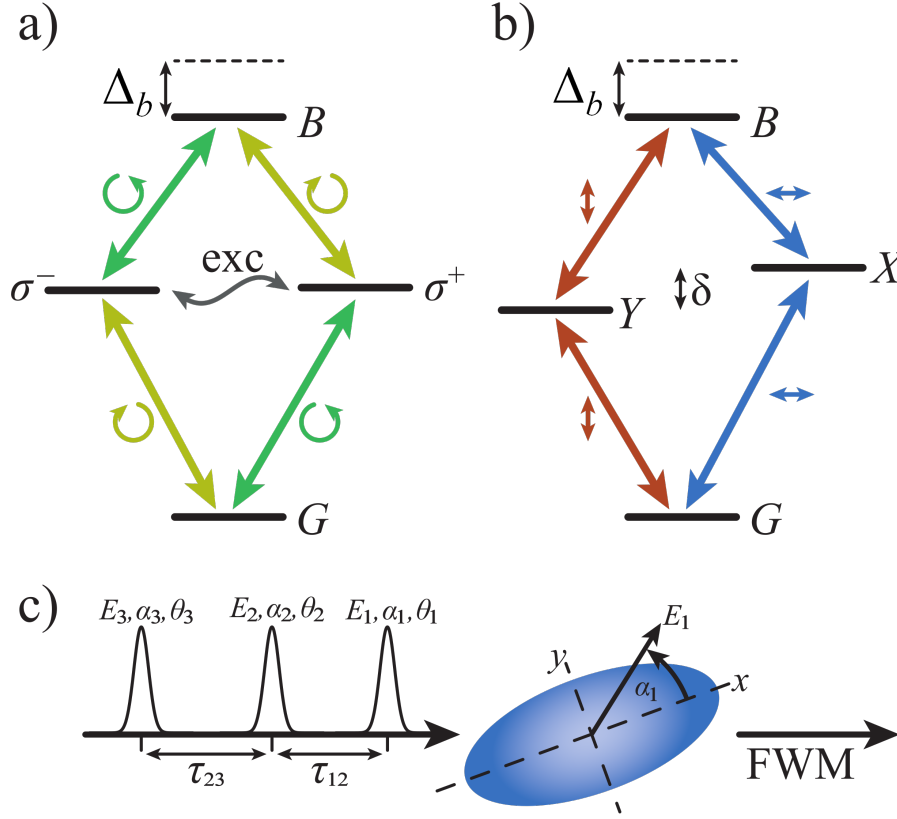


FIGURE 4.1 – Schéma d’un système exciton-biexciton dans une BQ pour une excitation polarisée (a) circulairement et (b) linéairement. (c) Schéma de la séquence d’impulsion pour les mesures FWM à trois faisceaux et de l’orientation des axes de la BQ.

où  $\Omega_{\sigma^\pm}$  correspond aux fréquences de Rabi :

$$\Omega_{\sigma^\pm} = \sum_i \frac{\mu}{\hbar} \mathbf{E}_i \cdot \mathbf{e}_{\sigma^\pm}^* \quad (4.4)$$

où  $\mu$  représente le moment dipolaire de la transition et  $\mathbf{e}_{\sigma^\pm}^*$  le vecteur polarisation. La polarisation du système dans la base circulaire est donnée par :

$$\mathcal{P} = \mu (|G\rangle \langle \sigma^+| + |\sigma^- \rangle \langle B|) \mathbf{e}_{\sigma^+} + \mu (|G\rangle \langle \sigma^-| + |\sigma^+ \rangle \langle B|) \mathbf{e}_{\sigma^-} \quad (4.5)$$

L’anisotropie du potentiel de confinement de la BQ et la structure zinc-blende du cristal semiconducteur engendrent une levée de dégénérescence  $\delta$  des niveaux d’énergie des deux excitons, illustrée sur la figure 4.1 (b). Par conséquent, les états propres du système ne correspondent plus à des états polarisés circulairement, mais à des états polarisés linéairement résultant d’une combinaison linéaire des polarisations circulaires tels que :

$$|X\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma^+\rangle + |\sigma^-\rangle) \quad (4.6a)$$

$$|Y\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\sigma^+\rangle - |\sigma^-\rangle) \quad (4.6b)$$

L’Hamiltonien peut donc être réécrit dans la base de polarisation linéaire, avec comme valeurs propres  $\sum_\nu \hbar\omega_\nu |\nu\rangle \langle \nu| + \mathcal{H}_{\text{exc}}$ . La diagonalisation de cet Hamiltonien entraîne alors

la levée de dégénérescence des niveaux excitoniques  $X$  et  $Y$  d'énergies respectives  $\hbar\omega_X = \hbar\omega_\sigma - \delta/2$  et  $\hbar\omega_Y = \hbar\omega_\sigma + \delta/2$ . La matrice d'interaction s'écrit alors :

$$M = \begin{pmatrix} 0 & \Omega_X^* & \Omega_Y^* & 0 \\ \Omega_X & 0 & 0 & \Omega_X^* \\ \Omega_Y & 0 & 0 & \Omega_Y^* \\ 0 & \Omega_X & \Omega_Y & 0 \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

avec :

$$\Omega_X = \frac{1}{\sqrt{2}} (\Omega_{\sigma+} + \Omega_{\sigma-}) \quad (4.8a)$$

$$\Omega_Y = \frac{i}{\sqrt{2}} (\Omega_{\sigma+} - \Omega_{\sigma-}) \quad (4.8b)$$

On définit les axes de polarisation  $x$  et  $y$  de la BQ, ainsi que l'angle de polarisation  $\alpha_i$  de l'excitation, tels que pour  $\alpha_i = 0^\circ$  uniquement  $|X\rangle$  est excité et pour  $\alpha_i = 90^\circ$  uniquement  $|Y\rangle$  est excité, comme le montre la figure 4.1 (c). Dans ces cas particuliers, le  $4\mathcal{LS}$  se réduit à un système à trois niveaux ( $3\mathcal{LS}$ ),  $GXB$  et  $GYB$  respectivement. Pour un angle intermédiaire  $\alpha_i$ , une combinaison linéaire des deux excitons  $X$  et  $Y$  est créée. Pour simplifier les notations, nous représenterons les angles de polarisation  $\alpha_i = (0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ)$  par  $(-, /, |, \backslash)$ .

Pour décrire l'évolution du  $4\mathcal{LS}$  au cours du temps, nous utilisons le formalisme de la matrice densité  $\rho$  introduit au chapitre 1 pour des impulsions infiniment courtes devant les processus de relaxation. La résolution analytique des équations de Bloch optiques (EBO) est basée sur les références [50, 76]. Pour une séquence d'impulsions polarisées circulairement, les fréquences de Rabi s'écrivent :

$$\Omega_{\sigma^\pm} = \sum_i \frac{\Theta_i^{\sigma^\pm}}{2} e^{i\phi_i^{\sigma^\pm}} \delta(t - t_i) \quad (4.9)$$

où  $t_i$  sont les temps d'arrivée des impulsions, d'aires  $\Theta_i^{\sigma^\pm}$  et de phases  $\phi_i^{\sigma^\pm}$ . Pour une séquence d'impulsions polarisées linéairement selon  $\alpha$  par rapport à  $X$ , les fréquences de Rabi s'écrivent :

$$\Omega_X = \sum_i \sqrt{2} \Theta_i e^{i\phi_i} \cos \alpha \quad (4.10a)$$

$$\Omega_Y = - \sum_i \sqrt{2} \Theta_i e^{i\phi_i} \sin \alpha \quad (4.10b)$$

Dans le cas d'impulsions optiques infiniment brèves (fonction Dirac), l'évolution temporelle du  $4\mathcal{LS}$  peut être calculée par une multiplication matricielle [76]. Entre chaque impulsion, les dynamiques des populations et des cohérences sont données par l'évolution de la matrice densité suivante :

$$\rho_{\nu\nu'}(t) = \rho_{\nu\nu'}(t_0) e^{i\Lambda_{\nu\nu'}(t-t_0)} \quad (4.11)$$

avec :

$$\Lambda_{\nu\nu'} = \omega_\nu - \omega_{\nu'} + i\gamma_{\nu\nu'} \quad (4.12a)$$

$$\gamma = \begin{pmatrix} 0 & \gamma_2 & \gamma_2 & \gamma_B \\ \gamma_2 & 0 & \gamma_{XY} & \gamma_2 \\ \gamma_2 & \gamma_{XY} & 0 & \gamma_2 \\ \gamma_B & \gamma_2 & \gamma_2 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.12b)$$

où  $\gamma_2 = 1/T_2$  correspond au taux de déphasage des cohérences excitoniques  $\rho_{GX}$ ,  $\rho_{GY}$ ,  $\rho_{XB}$  et  $\rho_{YB}$ .  $\gamma_B = 1/T_B$  correspond au taux de déphasage de la cohérence biexcitonique  $\rho_{GB}$ , et  $\gamma_{XY}$  correspond au taux de déphasage entre les deux excitons  $\rho_{XY}$ . Les déclin radiatifs de l'exciton et du biexciton sont modélisés par un seul taux  $\gamma_1$ , conduisant aux EBO pour les éléments diagonaux de la matrice densité suivant :

$$\rho_{BB}(t) = \rho_{BB}(0)e^{-2\gamma_1 t} \quad (4.13a)$$

$$\rho_{XX}(t) = [\rho_{XX}(0) + \rho_{BB}(0)(1 - e^{-\gamma_1 t})]e^{-\gamma_1 t} \quad (4.13b)$$

$$\rho_{YY}(t) = [\rho_{YY}(0) + \rho_{BB}(0)(1 - e^{-\gamma_1 t})]e^{-\gamma_1 t} \quad (4.13c)$$

$$\rho_{GG}(t) = 1 - [\rho_{XX}(0) + \rho_{YY}(0) + \rho_{BB}(0)(2 - e^{-\gamma_1 t})]e^{-\gamma_1 t} \quad (4.13d)$$

Dans ce cas, le temps  $t = 0$  correspond au temps après chaque impulsion. On remarque que le déclin du biexciton est deux fois plus rapide que celui de l'exciton.

A partir de ces équations, il est possible de calculer les dynamiques de tous les éléments de la matrice densité, autrement dit l'évolution temporelle de toutes les populations et cohérences du  $4\mathcal{LS}$ . Le signal FWM est extrait théoriquement en sélectionnant la phase de la polarisation qui dépend de l'ordre d'arrivée et des combinaisons de phase  $\phi_i$  des impulsions. Le signal D-FWM des cohérences est donné par la combinaison de phase  $2\phi_2 - \phi_1$ , tandis que le signal ND-FWM des populations est donné par  $\phi_3 + \phi_2 - \phi_1$ . Ces combinaisons de phase correspondent aux fréquences de détection hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$  et  $\Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$  respectivement. On note  $\mathcal{P}_{\text{FWM}}$  la polarisation du signal FWM sélectionnée. Pour des raisons de simplicité, dans le cas des populations, nous fixons  $\tau_{12} = 0$  ps pour reproduire le délai au temps court entre les impulsions. A partir de la polarisation, le signal FWM, que l'on note  $\mathcal{S}_{\nu\nu'}$ , est obtenu par transformée de Fourier à la fréquence sélectionnée :

$$\mathcal{S}_{\nu\nu'}(\omega) = \left| \int_0^\infty \mathcal{P}_{\text{FWM}} e^{-i\omega t} dt \right|_{\omega=\omega_\nu-\omega_{\nu'}} \quad (4.14)$$

Si la polarisation de la détection n'est pas alignée avec un des axes de la BQ, les polarisations des deux excitons sont projetées suivant l'angle du faisceau référence d'hétérodynage  $\alpha_r$  telles que :

$$\mathcal{S}_{GXY} = \cos^2(\alpha_r)\mathcal{S}_{GX} + \sin^2(\alpha_r)\mathcal{S}_{GY} \quad (4.15)$$

Notons que pour  $\alpha_r = 45^\circ$ , la dynamique de  $\mathcal{S}_{GXY}$  est proportionnelle à  $\mathcal{S}_{GX}$  et  $\mathcal{S}_{GY}$ . Pour comparer les mesures et les simulations théoriques, nous ajustons les formules analytiques sur les données expérimentales en variant les paramètres suivants : l'énergie de structure fine  $\delta$ , l'énergie de liaison du biexciton  $\Delta_b$ , et les temps de déclin et de déphasage des différentes transitions. Les valeurs des paramètres d'ajustement données dans ce chapitre correspondent aux valeurs utilisées pour les courbes théoriques.

#### 4.2.2 Classification des battements quantiques

La figure 4.2 (a) présente le spectre FWM d'une BQ individuelle obtenu pour une polarisation colinéaire  $(-, -)$ . On observe les pics de l'exciton  $GX$  et du biexciton  $XB$  séparés de  $\Delta_b \approx 3$  meV. L'encadré montre le spectre FWM obtenu pour une polarisation co-circulaire  $(\odot, \odot)$ , où nous mesurons l'énergie de structure fine entre les deux excitons  $\delta \approx 38$   $\mu\text{eV}$ . Les figures 4.2 (c,d) présentent les images hyperspectrales aux énergies de l'exciton et du biexciton de la BQ correspondante.

Les mesures réalisées dans ce chapitre nécessitent de connaître exactement l'aire des impulsions  $\Theta_i = \int dt \mu |E_i(t)|/\hbar \sim \sqrt{P_i}$ . Afin de ne pas exciter le biexciton, nous mesurons les

oscillations de Rabi de l'exciton avec une polarisation co-circulaire ( $\odot, \odot$ ). La figure 4.2 (b) montre une oscillation de Rabi obtenue en variant la puissance de la pompe  $P_1$ , pour une puissance de la sonde fixée à  $P_2 = 1 \mu\text{W}$ . Le maximum, qui correspond à  $\Theta_1 = \pi/2$ , est obtenu pour  $P_1 = 0.25 \mu\text{W}$ .

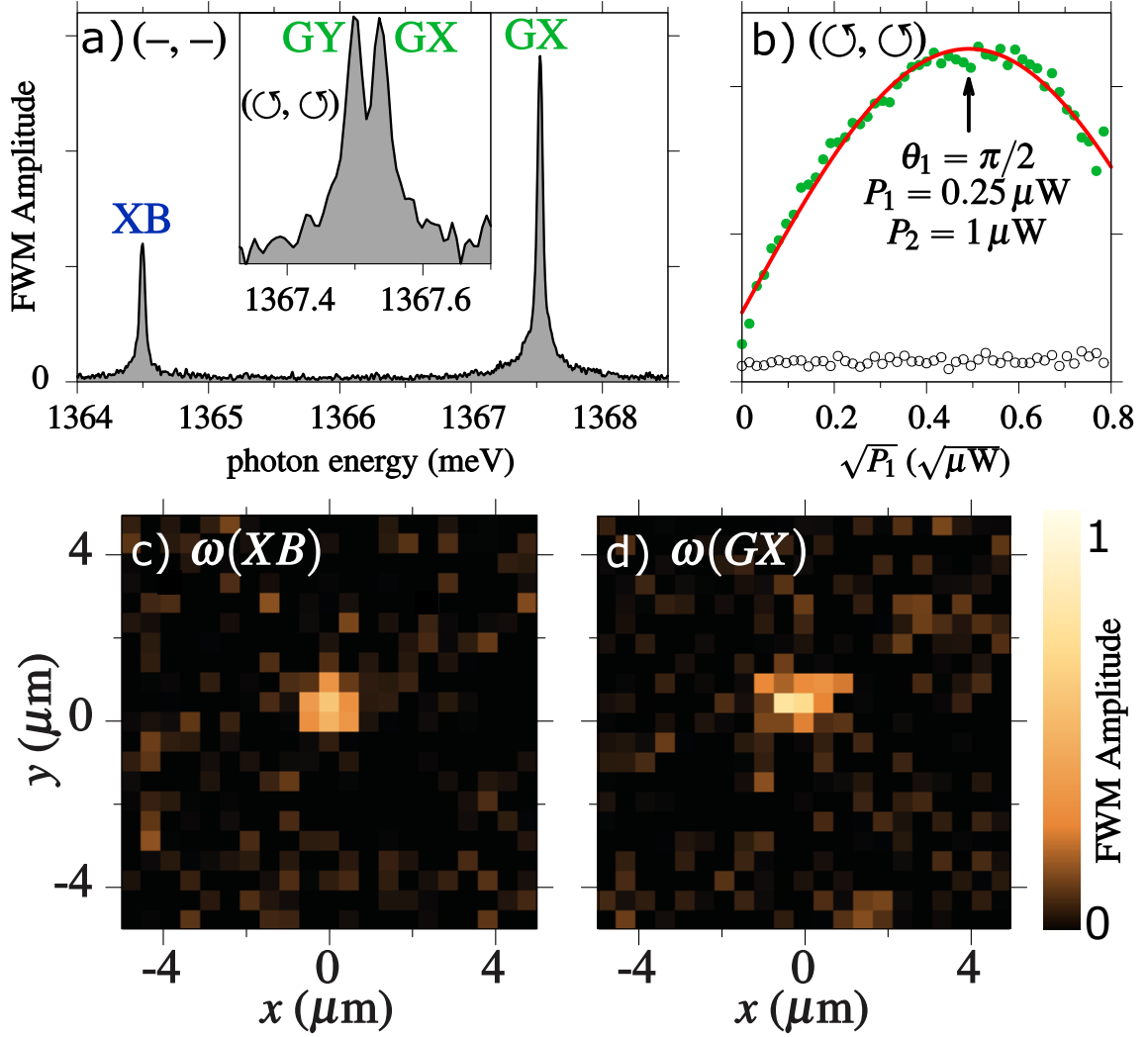


FIGURE 4.2 – **Identification d'un système exciton-biexciton.** (a) Spectre FWM d'un exciton  $GX$  et de son biexciton  $XB$  d'une BQ individuelle pour une polarisation colinéaire  $(-, -)$  détectée à la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Encadré : Zoom sur le pic de l'exciton pour une polarisation  $(\odot, \odot)$ . L'énergie de structure fine entre les deux excitons  $X$  et  $Y$  vaut  $\delta \approx 38 \mu\text{eV}$ . (b) Oscillation de Rabi du signal FWM en fonction de la puissance de la pompe  $\sqrt{P_1}$ . Le premier maximum correspondant à  $\Theta_1 = \pi/2$  est obtenu pour  $P_1 = 0.25 \mu\text{W}$ . La courbe rouge représente  $|\sin \Theta_1|$ . (c,d) Images hyper-spectrales du signal FWM de l'exciton et du biexciton.

Les énergies de liaison  $\Delta_b$  et de structure fine  $\delta$  donnent lieu à des battements quantiques temporels entre les niveaux  $GXY$  et  $XYB$ . Il est possible d'exciter séparément chacune de ces transitions en ajustant les polarisations de la pompe et de la sonde. En variant le délai  $\tau_{12}$  entre les deux impulsions, il est alors possible de mesurer ces battements quantiques via le signal FWM de la BQ. Dans le domaine temporel, les périodes de ces battements sont directement reliées aux différences d'énergie entre les niveaux, telles que



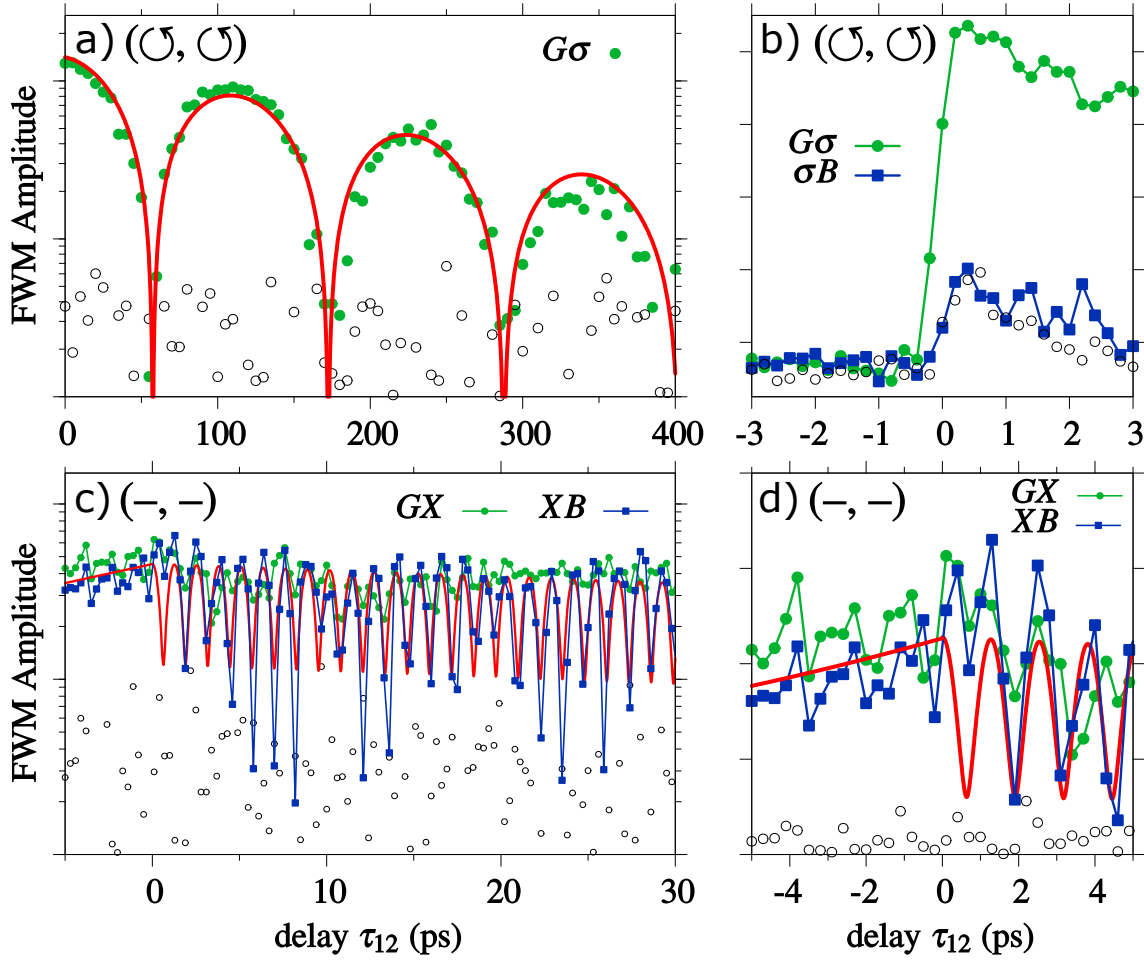


FIGURE 4.3 – **Battements quantiques d'un système exciton-biexciton.** (a,b) Signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour une polarisation co-circulaire. (c,d) Signal FWM en fonction du délai  $\tau_{12}$  pour une polarisation co-linéaire avec  $\alpha = 0^\circ$ . Ronds verts et carrés bleus : données expérimentales. Cercles gris : indication du niveau de bruit. Traits rouges : calculs théoriques.

$T_{\Delta_b} = 2\pi\hbar/\Delta_b$  et  $T_\delta = 2\pi\hbar/\delta$ . Le battement quantique induit par l'énergie de structure fine  $\delta$  est observé pour une polarisation co-circulaire, quand le biexciton n'est pas excité, comme le montre la figure 4.3 (a). L'impulsion pompe excite la transition  $G\sigma$ , laquelle correspond à une combinaison linéaire des deux excitons  $GX$  et  $GY$ . En évoluant dans le temps, les cohérences de  $G\sigma$  oscillent avec l'énergie de structure fine. Le signal FWM mesuré en fonction du délai  $\tau_{12}$  présente alors de forts battements quantiques et un déclin exponentiel correspondant à la décohérence de l'exciton [19, 35, 36, 75]. Ces mesures sont parfaitement reproduites analytiquement (courbe rouge) par l'équation 4.14 pour une polarisation co-circulaire :

$$\mathcal{S}_{G\sigma} \propto \exp\left(-\frac{\tau_{12}}{T_2}\right) \sqrt{\cos\left(\frac{\delta}{\hbar}\tau_{12}\right) + 1} \quad (4.16)$$

De cette équation, nous déduisons la période de battement  $T_\delta = 115$  ps qui correspond à une énergie de structure fine  $\delta = 36 \mu\text{eV}$ , en parfait accord avec l'énergie mesurée spectralement sur la figure 4.2 (a), ainsi que le temps de décohérence de l'exciton  $T_2 = 200$  ps. Pour une polarisation co-circulaire ( $\odot, \odot$ ), le signal FWM de la transition  $\sigma B$  est

supprimé (cf figure 4.1 (a)). En effet, en zoomant sur la dynamique des cohérences pour les délais proches de  $\tau_{12} = 0$  (cf figure 4.3 (b)), nous confirmons que le signal FWM de la transition  $\sigma B$  n'excède pas le niveau de bruit. Notons que l'augmentation du niveau de bruit pour  $\tau_{12} > 0$  provient des ailes de phonons acoustiques (cf chapitre 3). Pour les délais négatifs, le signal FWM est nul étant donné que le processus de cohérence à deux photons n'est pas possible pour une polarisation circulaire [75].

Pour déterminer l'énergie de liaison du biexciton  $\Delta_b$  dans le domaine temporel, nous excitons la BQ avec une polarisation colinéaire alignée avec ses axes, de sorte que le système se réduise à un  $3\mathcal{LS}$  GXB (cf figure 4.1 (b)). Dans ce cas, il n'y a pas de battement quantique induit par l'énergie de structure fine, étant donné que seules les transitions  $GX$  et  $XB$  sont excitées. Cela nous permet ainsi de mesurer uniquement le battement quantique induit par l'énergie de liaison. La dynamique du signal FWM est présentée sur la figure 4.3 (c), où le signal FWM des transitions  $GX$  et de  $XB$  est représenté en fonction du délai  $\tau_{12}$ . On observe de fortes oscillations sur le signal de  $XB$  avec une période de  $T_{\Delta_b} = 1.27$  ps, correspondant à une énergie de liaison de  $\Delta_b = 3.25$  meV. Cette valeur est en parfait accord avec la valeur mesurée spectralement sur la figure 4.2 (a). Ces oscillations sont également observées dans le signal de  $GX$ , mais avec une amplitude plus faible. Cette dynamique est décrite analytiquement par l'équation 4.14 pour un angle de polarisation  $\alpha = 0^\circ$  et une aire d'impulsion  $\Theta_1 = 0.6 \pi$  ( $\Theta_2 = 2\Theta_1$ ). On obtient alors :

$$\mathcal{S}_{GX} \propto \exp\left(-\frac{\tau_{12}}{T_2}\right) \sqrt{4.36 + \cos\left(\frac{\Delta_b}{\hbar}\tau_{12}\right)} \quad (4.17a)$$

$$\mathcal{S}_{XB} \propto \exp\left(-\frac{\tau_{12}}{T_2}\right) \sqrt{1.15 + \cos\left(\frac{\Delta_b}{\hbar}\tau_{12}\right)} \quad (4.17b)$$

Notons que le signe devant le cosinus est négatif pour  $\Theta_1 < \pi/2$  et positif pour  $\Theta_1 > \pi/2$ . Pour ne pas surcharger, les figures 4.3 (c) et (d), nous montrons uniquement l'équation 4.17b (courbe rouge).

Pour les délais négatifs, i.e.  $\mathcal{E}_2$  arrive avant  $\mathcal{E}_1$ , la cohérence à deux photons  $\rho_{GB}$  entre l'état fondamental et le biexciton est permise. Cette cohérence est transférée en signal FWM par  $\mathcal{E}_1$ , et décline exponentiellement pour  $GX$  et  $XB$  à la fois selon la relation suivante :

$$\mathcal{S}_{GX, XB}^{\tau < 0} \propto e^{-\gamma_B \tau_{12}} \quad (4.18)$$

Cette équation permet de décrire le signal FWM illustré sur les figures 4.3 (c) et (d), pour lesquelles nous observons un rapide déclin des cohérences de  $GX$  et  $XB$  pour les délais négatifs.

Résoudre les oscillations liées à l'énergie de liaison du biexciton requiert une grande résolution temporelle ( $\Delta_b \tau_{12} < 0.25$  ps) et par conséquent des temps d'acquisition importants pour les délais longs. Dans la suite de ce chapitre, le pas entre deux délais est volontairement choisi pour ne pas résoudre ces battements rapides. Dans les prochaines parties, les résultats présentés ont été obtenus avec différentes BQs, lesquelles présentent les mêmes battements quantiques mais à des échelles de temps différentes selon les énergies  $\Delta_b$  et  $\delta$  impliquées.

### 4.2.3 Dynamiques des cohérences en fonction de la polarisation

Lorsque la polarisation de l'excitation dévie de la polarisation purement co-circulaire  $\odot$  ou  $\ominus$ , ou purement colinéaire  $|$  ou  $-$ , pour lesquelles le système exciton-biexciton est réduit à un  $2\mathcal{LS}$  ou un  $3\mathcal{LS}$  respectivement, les quatre transitions sont excitées donnant

lieu à des dynamiques plus complexes, mélangeant les battements quantiques induits par la structure fine et le déphasage des différentes transitions. Il est possible de mesurer ces dynamiques en ajustant l'angle de polarisation  $\alpha$  des lasers d'excitations. La figure 4.4 présente des mesures expérimentales et des simulations théoriques du signal FWM d'une BQ en fonction du délai  $\tau_{12}$  et de l'angle de polarisation ( $\alpha_1, \alpha_2$ ) de la pompe et de la sonde pour une excitation colinéaire, et des aires d'impulsions  $\Theta_1 = \Theta_2/2 = 0.2 \pi$ . Les mesures (figure 4.4 (a,b)) sont en accord avec les simulations théoriques (figure 4.4 (c,d)).

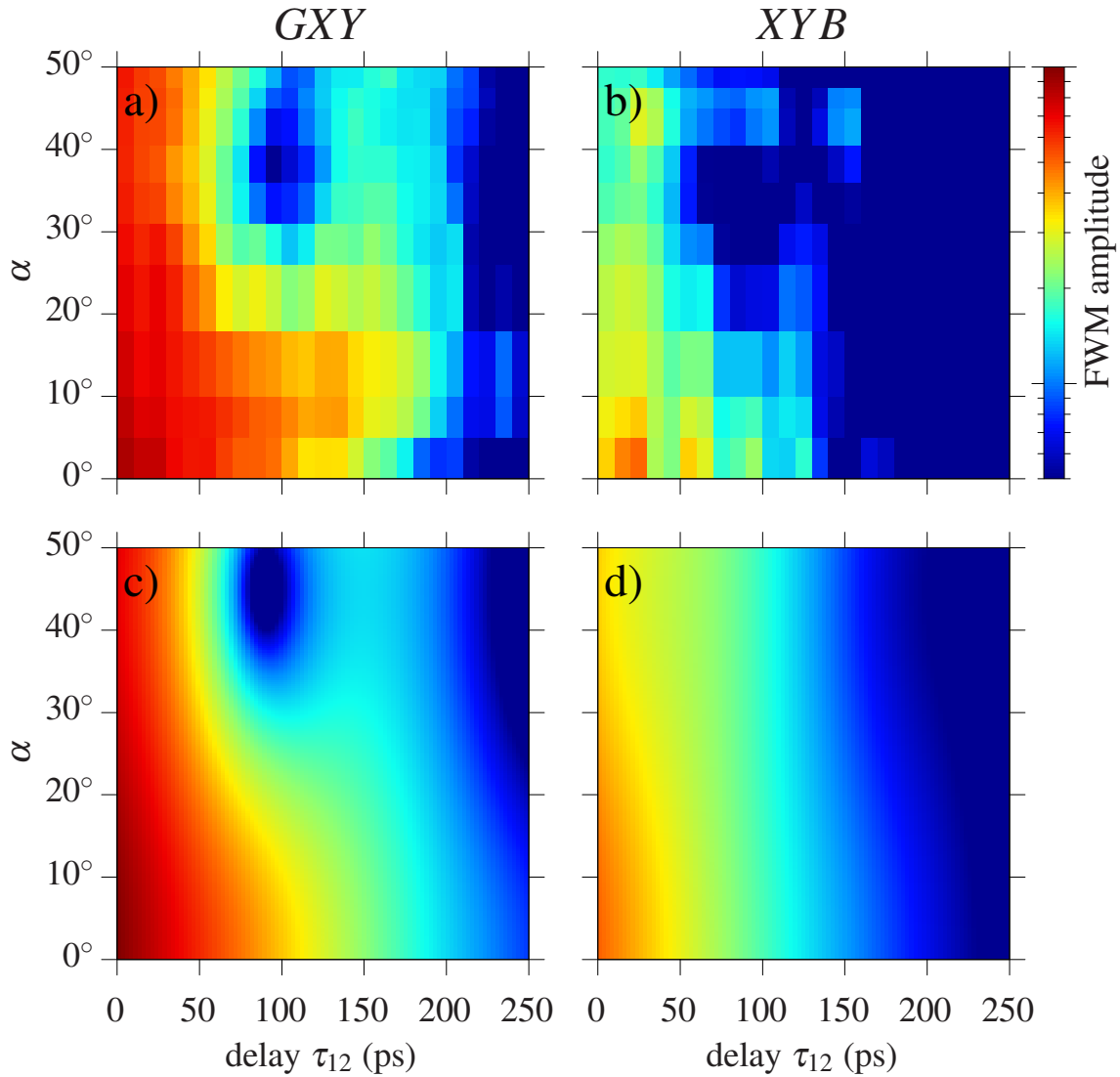


FIGURE 4.4 – **Dynamique des cohérences pour une excitation colinéaire.** (a,b) Mesures et (c,d) simulations du signal FWM des transitions (a,c)  $GXY$  et (b,d)  $XYB$  en fonction du délai  $\tau_{12}$  et de l'angle de polarisation  $\alpha$  pour une excitation colinéaire.

Comme expliqué dans la partie précédente, pour  $\alpha = 0^\circ$  le battement quantique induit par la structure fine de l'exciton n'est pas observé ni pour  $GXY$  ni pour  $XYB$ , vu que l'excitation est polarisée selon l'axe  $x$  de la BQ. A la place, nous observons uniquement le déclin des cohérences de l'exciton avec un temps de déphasage  $T_2 = 200$  ps. En revanche, pour  $\alpha = 45^\circ$  le battement induit par la structure fine est maximal pour  $GXY$ . Pour cet angle, les deux excitons  $X$  et  $Y$  sont excités de manière égale, engendrant un battement de la structure fine avec une période de  $T_\delta = 180$  ps. Pour les angles intermédiaires entre

$\alpha = 0^\circ$  et  $45^\circ$ , on observe une transition douce avec un battement de structure fine moins prononcé. De telles mesures résolues en angle peuvent être utilisées pour déterminer les angles absolus  $(x, y)$  de la BQ avec une bonne précision. Contrairement à la polarisation circulaire, la transition  $XB$  est excitée avec une polarisation linéaire. Cependant, pour une si petite aire d'impulsion, le signal de  $XYB$  est faible car le biexciton n'est pratiquement pas excité. Pour des aires d'impulsions plus élevées, le battement induit par la structure fine devrait être observable dans le signal de  $XYB$ .

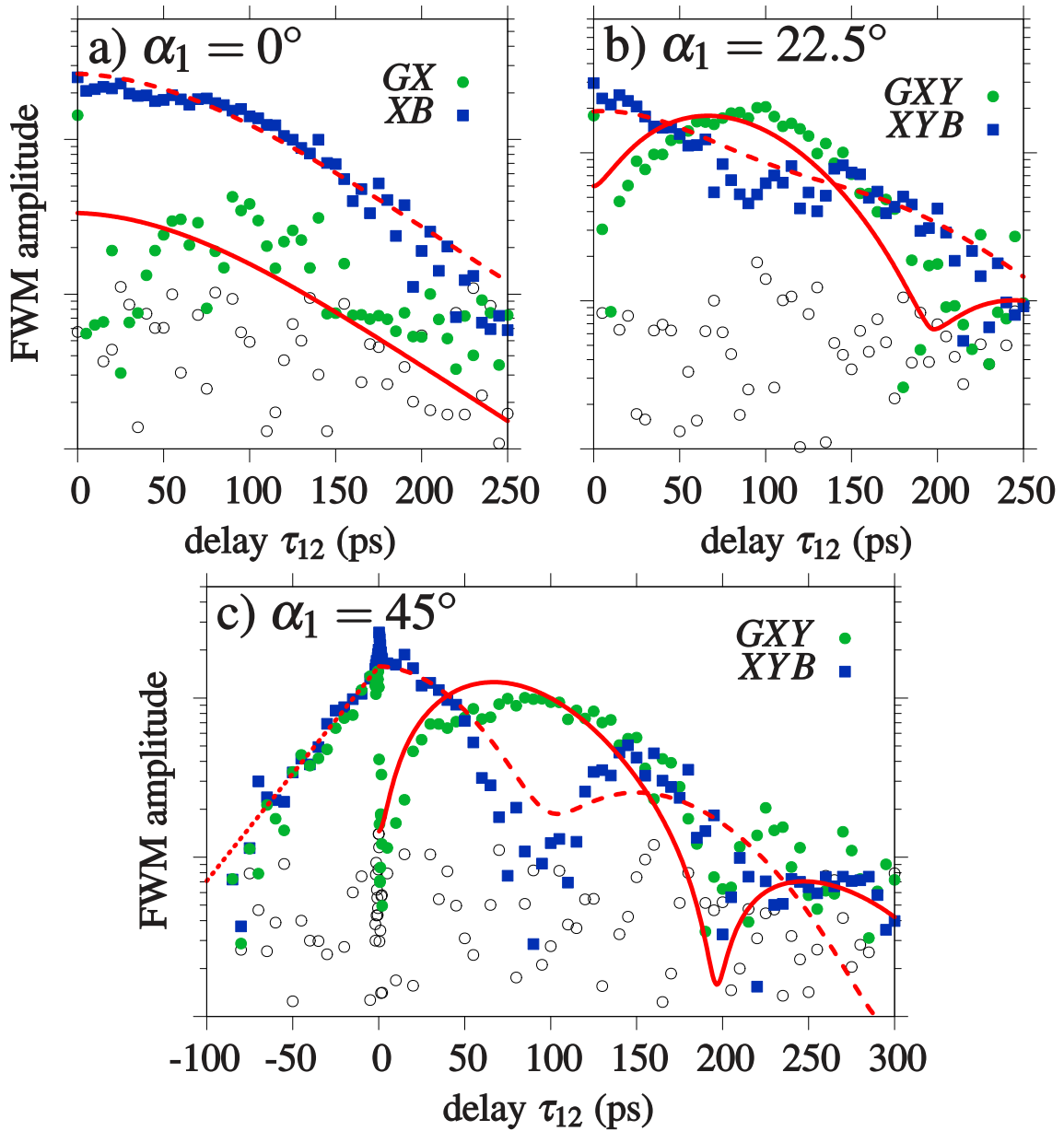


FIGURE 4.5 – **Dynamiques des cohérences pour une excitation linéaire croisée.** Signal FWM des cohérences  $GXY$  et  $XYB$  pour une polarisation linéaire croisée entre la pompe et la sonde, i.e.  $\alpha_2 = \alpha_1 + 90^\circ$ . (a)  $\alpha_1 = 0^\circ$ , (b)  $\alpha_1 = 22.5^\circ$  et (c)  $\alpha_1 = 45^\circ$ . Ronds verts et carrés bleus : données expérimentales. Cercles gris : indication du niveau de bruit. Traits rouges : calculs théoriques.

Nous avons également analysé la dépendance de l'angle de polarisation pour une excitation linéaire croisée, où l'angle de polarisation de  $\mathcal{E}_2$  est perpendiculaire à celui de  $\mathcal{E}_1$ , i.e.  $\alpha_2 = \alpha_1 + 90^\circ$ . Ici, les aires d'impulsions sont plus importantes  $\Theta_1 = \Theta_2/2 = 0.37 \pi$ . Les mesures pour différents angles  $\alpha_1$  sont présentées sur la figure 4.5. Pour  $\alpha_1 = 0^\circ$ , principalement la transition  $XB$  est excitée, alors que  $GX$  n'est quasiment pas excité, comme le montre la figure 4.5 (a). Pour  $\alpha_1 = 45^\circ$ , illustré sur la figure 4.5 (c), des oscillations prononcées sont observées à la fois pour  $GXY$  et pour  $XYB$ . Autour de  $\tau_{12} = 0$ , on observe que le signal de  $XYB$  est maximum, alors que le signal de  $GXY$  est nul (niveau de bruit). Pour les délais négatifs,  $\mathcal{E}_2$  arrive avant  $\mathcal{E}_1$  et génère la cohérence à deux photons  $\rho_{GB}$  entre l'état fondamental et le biexciton. Le déclin observé, correspondant au taux de déphasage  $\gamma_B$  entre le biexciton et l'état fondamental, est parfaitement reproduit par l'équation 4.18 et correspond à un temps de décohérence  $T_B = 1/\gamma_B = 91$  ps. Pour un angle intermédiaire  $\alpha_1 = 22.5^\circ$ , les oscillations du signal FWM de  $GXY$  et de  $XYB$  sont moins prononcées, les premiers minimums n'atteignent plus le niveau de bruit, comme le montre la figure 4.5 (b).

#### 4.2.4 Dynamiques des populations en fonction de la polarisation

Concentrons nous maintenant sur la dynamique des populations. Lorsqu'un  $2\mathcal{LS}$  est excité par trois impulsions successives, la première crée une cohérence maximale à  $\Theta_1 = \pi/2$ , la deuxième crée une population maximale à  $\Theta_2 = \pi/2$  et la troisième induit le signal FWM maximal à  $\Theta_3 = \pi/2$ . L'information sur le déclin radiatif du  $2\mathcal{LS}$  est mesurable en variant le délai  $\tau_{23}$  entre la deuxième et la troisième impulsion (cf chapitre 1). Sur la figure 4.6 (a), nous montrons le signal des populations des transitions  $GXY$  et  $XYB$  pour une excitation colinéaire  $(-, -, -)$  en fonction de  $\tau_{23}$  ( $\tau_{12} = 0.5$  ps). Les formules analytiques montrent que le signal FWM mesuré décroît exponentiellement avec  $\gamma_1$  et  $2\gamma_1$ , sans oscillations induites par la structure fine de l'exciton. Pour  $\Theta_1 = \Theta_2 = \Theta_3 = 0.85 \pi$ , on trouve :

$$\mathcal{S}_{GXY} \sim e^{-\gamma_1 \tau_{23}} - 0.29e^{-2\gamma_1 \tau_{23}} \quad (4.19a)$$

$$\mathcal{S}_{XYB} \sim e^{-\gamma_1 \tau_{23}} + 0.76e^{-2\gamma_1 \tau_{23}} \quad (4.19b)$$

Du déclin exponentiel du signal FWM, nous en déduisons le temps de vie de l'exciton  $T_1 = 1/\gamma_1 = 333$  ps. Comme pour les cohérences, la structure fine de l'exciton induit un battement quantique des populations quand la polarisation de l'excitation n'est pas alignée avec les axes de la BQ, comme on peut le constater sur les figures 4.6 (b-d).

Commençons par l'excitation co-circulaire  $(\oslash, \oslash, \oslash)$  illustrée sur la figure 4.6 (b). Les deux premières impulsions créent une population de l'exciton  $\sigma^+$ . A partir de cet état, la troisième impulsion polarisée  $\oslash$  ne peut pas exciter le biexciton (voir figure 4.1 (a)). Par conséquent, à  $\tau_{23} = 0$ , le signal  $\mathcal{S}_{XYB}$  est nul. Rappelons-nous que  $\sigma^+$  est une combinaison linéaire des excitons  $X$  et  $Y$ . Après les deux premières impulsions, les populations et la polarisation  $\rho_{XY}$  entre les deux excitons contribuent au signal FWM. Cette dernière oscille avec l'énergie de structure fine  $\delta$ , ce qui est à l'origine des battements observés dans le signal FWM de  $GXY$ . Pour cette BQ, la période des oscillations  $T_\delta = 196$  ps correspond à une énergie de structure fine  $\delta = 21 \mu\text{eV}$ . Cette valeur, différente de la BQ étudiée dans la partie 4.2.2, montre que l'énergie de structure fine dépend sensiblement de la BQ. Après  $T_\delta$ , la population de l'exciton  $\sigma^-$  est établie, et permet ainsi d'exciter le biexciton via la transition  $\sigma^-B$  avec la troisième impulsion polarisée  $\oslash$ . Par conséquent, le maximum de signal pour  $\sigma B$  coïncide avec le minimum de signal pour  $G\sigma$ . Les équations décrivant ces

dynamiques sont les suivantes :

$$\mathcal{S}_{G\sigma} = \mathcal{S}_{GXY} \sim \sqrt{6 \cos\left(\frac{\delta\tau_{23}}{\hbar}\right) e^{-(\gamma+\gamma_{XY})\tau_{23}} + 9e^{-2\gamma\tau_{23}} + e^{-2\gamma_{XY}\tau_{23}}} \quad (4.20a)$$

$$\mathcal{S}_{\sigma B} = \mathcal{S}_{XYB} \sim \sqrt{2 \cos\left(\frac{\delta\tau_{23}}{\hbar}\right) e^{-(\gamma+\gamma_{XY})\tau_{23}} - e^{-2\gamma\tau_{23}} - e^{-2\gamma_{XY}\tau_{23}}} \quad (4.20b)$$

Comme les dynamiques des cohérences, les aires des impulsions déterminent uniquement les pré-facteurs, mais n'influencent pas les dynamiques temporelles. On observe un terme oscillatoire avec l'énergie de structure fine  $\delta$ , lequel est amorti par le taux de déphasage  $\gamma_{XY}$  des cohérences  $\rho_{XY}$  entre les deux excitons.

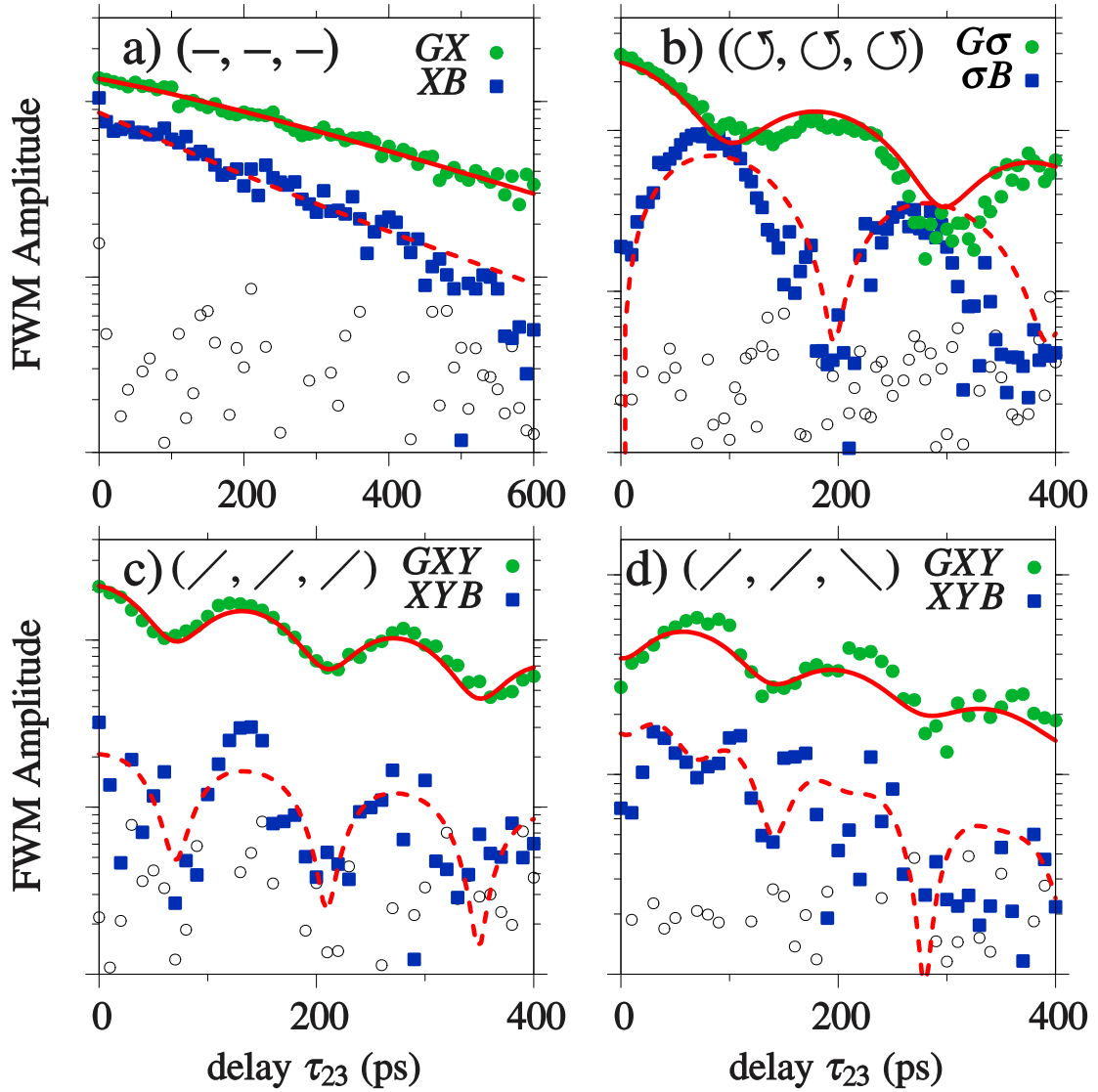


FIGURE 4.6 – **Dynamiques des populations d'un système exciton-biexciton.** Signal FWM non-dégénéré montrant les dynamiques des populations pour différentes polarisations d'excitation. (a)  $(-, -, -)$ , (b)  $(\odot, \odot, \odot)$ , (c)  $(/, /, /)$  et (d)  $(/, /, \backslash)$ . Ronds verts et carrés bleus : données expérimentales. Cercles gris : indication du niveau de bruit. Traits rouges : calculs théoriques.

De la même manière, une excitation linéaire ( $\swarrow, \nearrow, \searrow$ ) excite à la fois les deux excitons  $X$  et  $Y$ . Les populations des deux excitons oscillent avec l'énergie de structure fine comme le montre sur la figure 4.6 (c). Ces mesures ont été réalisées sur une autre BQ, pour laquelle nous mesurons  $T_\delta = 140$  ps équivalent à une énergie de structure fine  $\delta = 30$   $\mu\text{eV}$ . Contrairement à l'excitation circulaire, le biexciton est directement accessible avec une polarisation linéaire. Par conséquent, comme pour  $GXY$ , le signal  $XYB$  est maximum à  $\tau_{23} = 0$  puis oscille avec la même période que  $GXY$ .

Enfin, nous avons examiné les dynamiques de populations pour une excitation linéaire croisée ( $\swarrow, \nearrow, \searrow$ ) illustrées sur la figure 4.6 (d). Dans cette configuration, les populations  $GXY$  oscillent en opposition de phase par rapport à l'excitation colinéaire. De plus, toutes les polarisations du  $4\mathcal{LS}$  contribuent au signal, i.e.  $\rho_{GXY}$ ,  $\rho_{XY}$  et  $\rho_{XYB}$ , et engendrent des dynamiques plus complexes sur le signal de  $XYB$  impliquant des battements quantiques entre les différents niveaux.

### 4.3 Spectroscopie 2D-FWM d'une BQ à fluctuation de charge

#### 4.3.1 Interprétation des états chargés

L'état de charge d'une BQ peut fluctuer sur des échelles de temps beaucoup plus rapide que le temps d'intégration typique de 10 ms [79]. Par conséquent, en plus des raies de l'exciton et du biexciton neutre, une variété de pics correspondant à différents états chargés apparaissent dans les spectres FWM. L'exemple d'un tel spectre FWM pour une excitation colinéaire  $(-, -)$  est illustré sur la figure 4.7 (a). Le spectre présente une multitude de pics répartis sur plusieurs meV. Le dopage négatif de nos échantillon favorise la présence d'états chargés négativement. Très souvent, les BQs contiennent un électron avant l'excitation, donnant un état fondamental  $G^-$ . Quand une telle BQ est excitée avec une impulsion optique résonante, l'exciton chargé (ou trion) négativement  $X^-$  est généré via la transition  $GX^-$ , comme représenté sur la figure 4.8 (a). En raison du dopage, l'intensité de  $GX^-$ , plus élevée que celle de  $GX$ , nous permet de l'identifier comme le pic le plus intense à 1364.8 meV sur la figure 4.7 (a).

Pour identifier les transitions  $GX$  et  $XB$  de l'exciton neutre, nous regardons la dépendance en délai. L'évolution temporelle en fonction de  $\tau_{12}$  de toutes les transitions est illustrée sur la figure 4.7 (b), tandis que les dynamiques de  $GX$ ,  $XB$  et  $GX^-$  sont représentées plus en détails sur la figure 4.7 (c). Nous avons vu dans la partie 4.2.2, que les transitions neutres  $GX$  et  $XB$  produisent du signal FWM pour  $\tau_{12} < 0$  via le processus de cohérence à deux photons. De plus, nous avons vérifié que ces transitions obéissent aux règles de sélection de polarisation que l'on a détaillées précédemment dans la partie 4.2.3. Avec ces informations, nous identifions facilement  $GX$  à 1367.5 meV et  $XB$  à 1364.5 meV. En revanche, le trion négatif  $X^-$  ne crée pas de signal FWM pour  $\tau_{12} < 0$  car le biexciton chargé négativement est trop loin en énergie pour être excité spectralement [55]. Ceci est confirmé en regardant la transition  $GX^-$  sur les figures 4.7 (b,c), où en effet  $GX^-$  est nulle pour  $\tau_{12} < 0$ . Pour les délais positifs, nous pouvons identifier les transitions avec les battements quantiques. Comme précédemment (cf figure 4.3 (c)), on observe le battement quantique induit par l'énergie de liaison du biexciton dans le signal de la transition  $XB$  avec une période  $T_{\Delta_b} = 1.25$  ps, sur plusieurs centaines de picoseconde. À l'inverse, la transition  $GX^-$  ne montre aucun battement quantique, mais uniquement un déclin exponentiel. Ceci est attendu, puisque  $G^-$  et  $X^-$  forme une  $2\mathcal{LS}$ , comme représenté sur la figure 4.8 (a), où uniquement le déphasage altère le signal FWM. Pour ce trion, nous mesurons un temps de décohérence  $T_2 = 270$  ps.

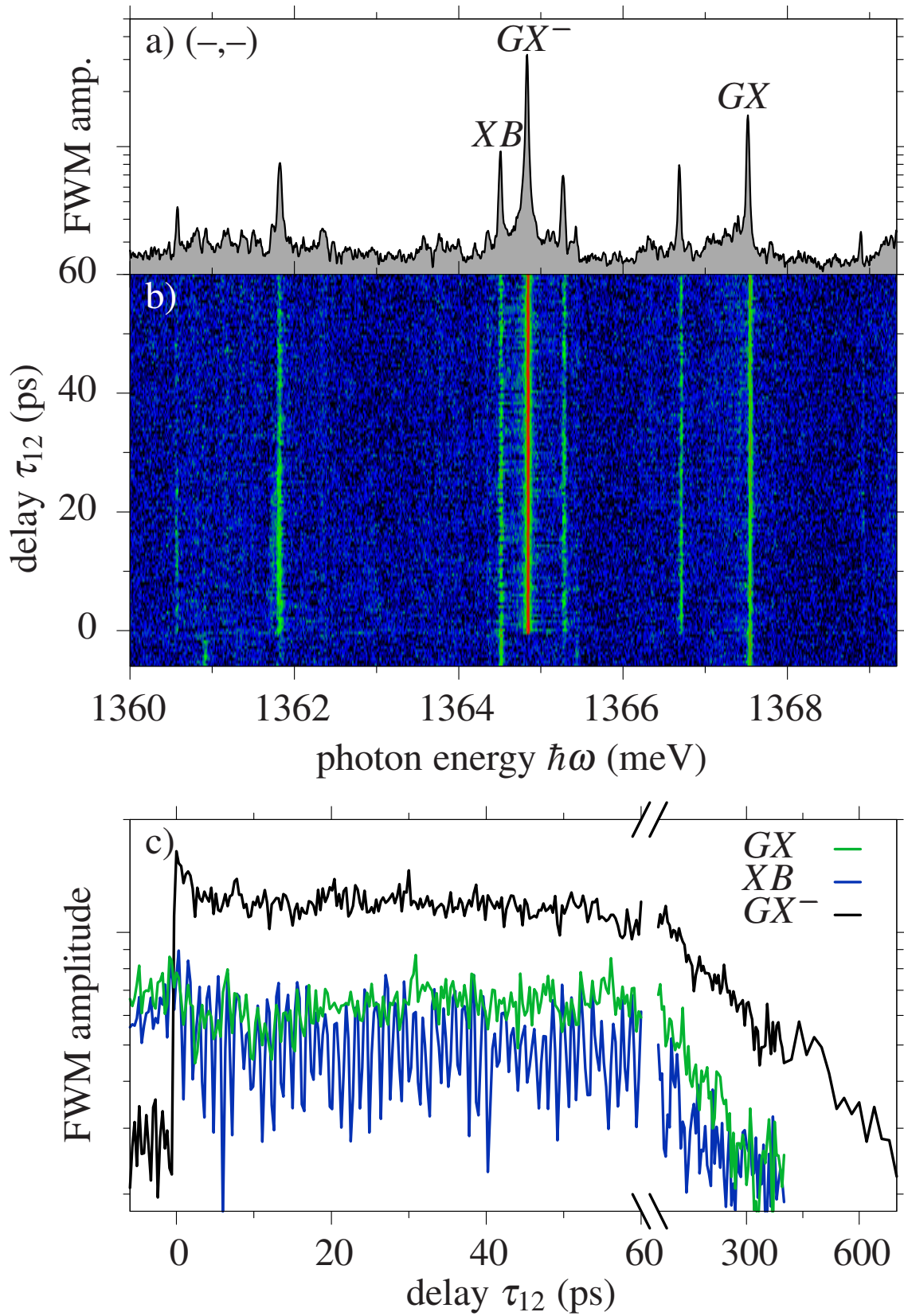


FIGURE 4.7 – Signal FWM d'une BQ à fluctuation de charge. (a) Spectre FWM dégénéré d'une BQ pour une excitation colinéaire  $(-, -)$  montrant une multitude de pics et leurs (b) dynamiques temporelles en fonction du délai  $\tau_{12}$ . (c) Dynamiques temporelles des transitions  $GX$ ,  $XB$  et  $GX^-$ .



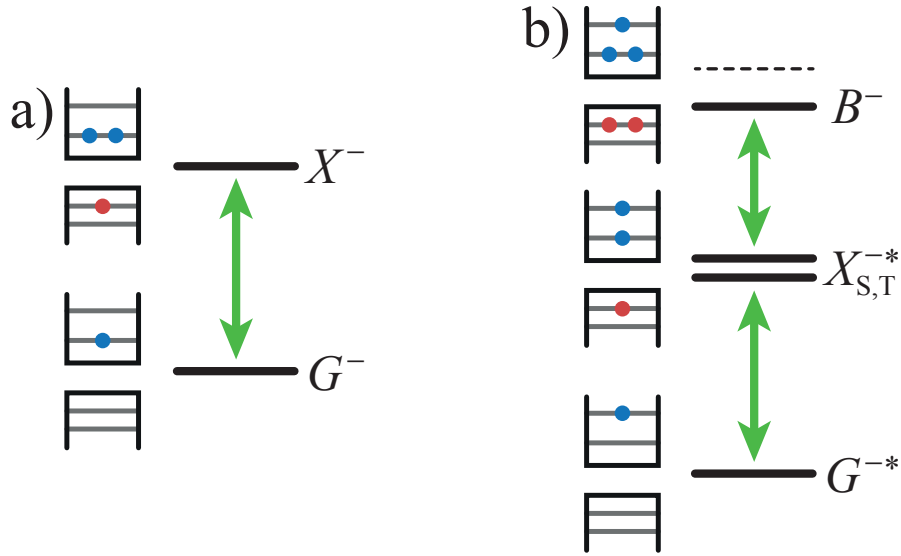


FIGURE 4.8 – Représentation schématique (a) d’un trion négatif  $X^-$  et (b) d’un biexciton négatif  $B^-$  et de l’état excité du trion négatif excité  $X_{S,T}^{-*}$ .

### 4.3.2 Couplages cohérents via 2D-FWM

Plus d’informations sur les complexes excitoniques de la BQ peuvent être extraites des cartes spectrales bidimensionnelles 2D-FWM. Ces cartes sont obtenues par transformée de Fourier 2D par rapport au temps  $t$  (axe horizontal) et au délai  $\tau_{12}$  (axe vertical). La transformée de Fourier par rapport à  $t$  est directement réalisée par le spectromètre, tandis que la transformée de Fourier par rapport à  $\tau_{12}$  requiert un ajustement de la phase entre chaque délai pour chaque transition en fonction d’une transition de référence non couplée [13]. Pour se faire, nous choisissons la transition  $GX^-$  comme référence. Les cartes 2D-FWM corrélient les résonances actives au premier ordre d’absorption  $\omega_1$  (axe vertical), avec les résonances FWM  $\omega$  (axe horizontal). Le spectre FWM peut être retrouvé à partir de la carte 2D en intégrant selon l’axe vertical. Un spectre 2D-FWM permet de détecter les couplages cohérents entre différentes transitions, lesquels apparaissent comme des pics hors diagonaux, i.e  $\omega_1 \neq \omega$ . Un exemple de spectre 2D réalisé avec la BQ de la figure 4.7, mais avec une puissance d’excitation plus élevée, est illustré sur la figure 4.9. Concentrons-nous dans un premier temps sur les complexes d’excitons neutres. Les deux pics sur la diagonale à 1367.5 meV et 1364.5 meV correspondent respectivement aux transitions  $GX$  et  $XB$  que l’on a identifiées sur la figure 4.7. A partir des dynamiques temporelles présentées sur la figure 4.7 (c), nous avons vu que le signal FWM de la transition  $XB$  est affecté par le battement quantique induit par l’énergie de liaison du biexciton. Sur la carte 2D-FWM, ce battement se traduit par un pic hors diagonal à l’énergie de l’exciton et du biexciton, i.e  $\omega = 1364.5$  meV et  $\omega_1 = 1367.5$  meV. Ce pic hors diagonal correspond au couplage cohérent entre l’exciton neutre  $X$  et le biexciton neutre  $B$ . Deux autres pics sont également connectés avec le complexe excitonique neutre. Ces derniers sont reliés par les traits pointillés oranges. Ils peuvent correspondre à des complexes excitoniques formés par un électron ou un trou sur la couche  $P$ , ou à d’autres BQs couplées.

Pour les excitons chargés, nous observons également des pics sur la diagonale. Le pic le plus intense à 1364.8 meV, qui correspond à la transition  $GX^-$ , n’est pas connecté à d’autres transitions via des pics hors diagonaux. Ceci confirme l’hypothèse que  $G^-$  et  $X^-$  forment un  $2\mathcal{L}\mathcal{S}$ , sans couplage avec le biexciton négatif  $B^-$ . Souvenons nous que  $B^-$  est

formée par trois électrons, deux sur la couche  $S$  et un sur la couche  $P$ , et de deux trous sur la couche  $S$ , comme représenté sur la figure 4.8 (b). En principe, il est possible d'exciter cette transition à partir du trion  $X^-$  en excitant un exciton sur la couche  $P$ , mais l'énergie de la couche  $P$  est trop éloignée pour être excitée par les impulsions laser.

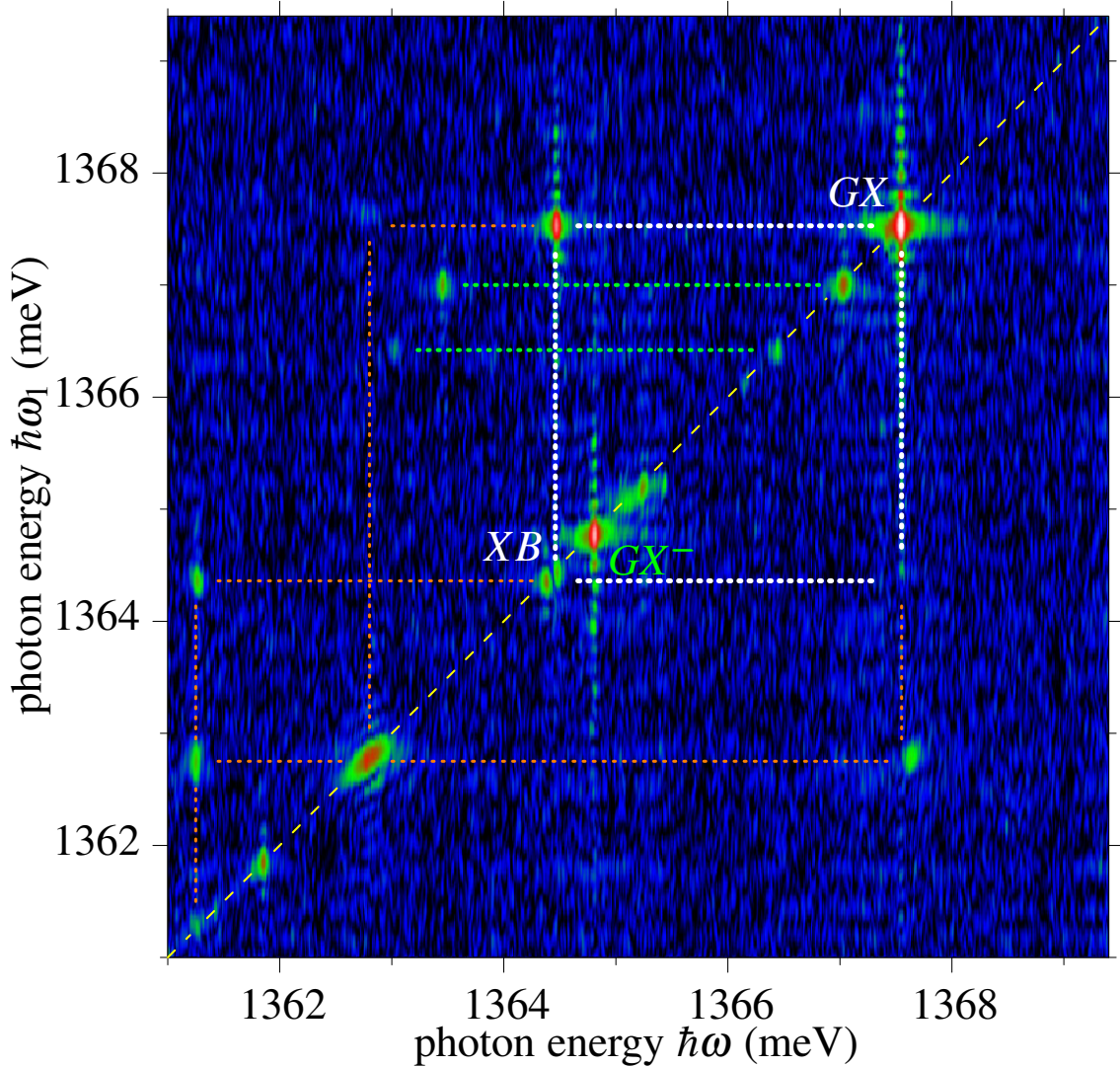


FIGURE 4.9 – Carte 2D-FWM d'une BQ à fluctuation de charge. Les différents couplages entre les transitions excitoniques sont représentés par des traits pointillés blancs, oranges et verts. La diagonale ( $\omega_1 = \omega$ ) est représentée par des traits pointillés jaunes.

En revanche, le biexciton négatif  $B^-$  peut se désintégrer par recombinaison de l'exciton sur la couche  $S$  à travers le trion excité  $X_{S,T}^{-*}$  formé d'un électron et d'un trou sur la couche  $S$  et d'un électron sur la couche  $P$ . En raison de l'interaction d'échange entre les électrons, l'énergie du trion excité se divise en deux niveaux d'énergie, l'état singulet  $X_S^{-*}$  et l'état triplet  $X_T^{-*}$ , lesquels sont séparés par quelques meV [80, 81]. À partir du trion excité, la recombinaison de l'exciton sur la couche  $S$  peut avoir lieu, pour aboutir à l'état fondamental chargé négativement  $G^{-*}$  composé d'un électron sur la couche  $P$ . Un tel  $3\mathcal{LS}$  peut donner lieu à des pics hors diagonaux reflétant les couplages entre ces états. Sur la carte 2D de la figure 4.9, nous observons deux pics sur la diagonale à 1367 meV et 1366.5 meV, connectés par les traits pointillés verts à deux pics hors diagonaux. Il est très probable que ces pics

correspondent à des complexes excitoniques chargés, puisqu'ils ne sont pas couplés à des transitions neutres, et ils pourraient correspondre aux transitions singulet et triplet  $GX_{S,T}^{-*}$ . Toutefois, même si les états chargés positivement sont très peu probables en présence du dopage négatif, nous ne pouvons exclure cette hypothèse, laquelle serait en accord avec de récentes études réalisées via l'excitation de photoluminescence (PLE) [55]. Par conséquent nous nous abstenons d'une attribution définitive.

### 4.3.3 Dépendance du couplage en fonction de la puissance d'excitation

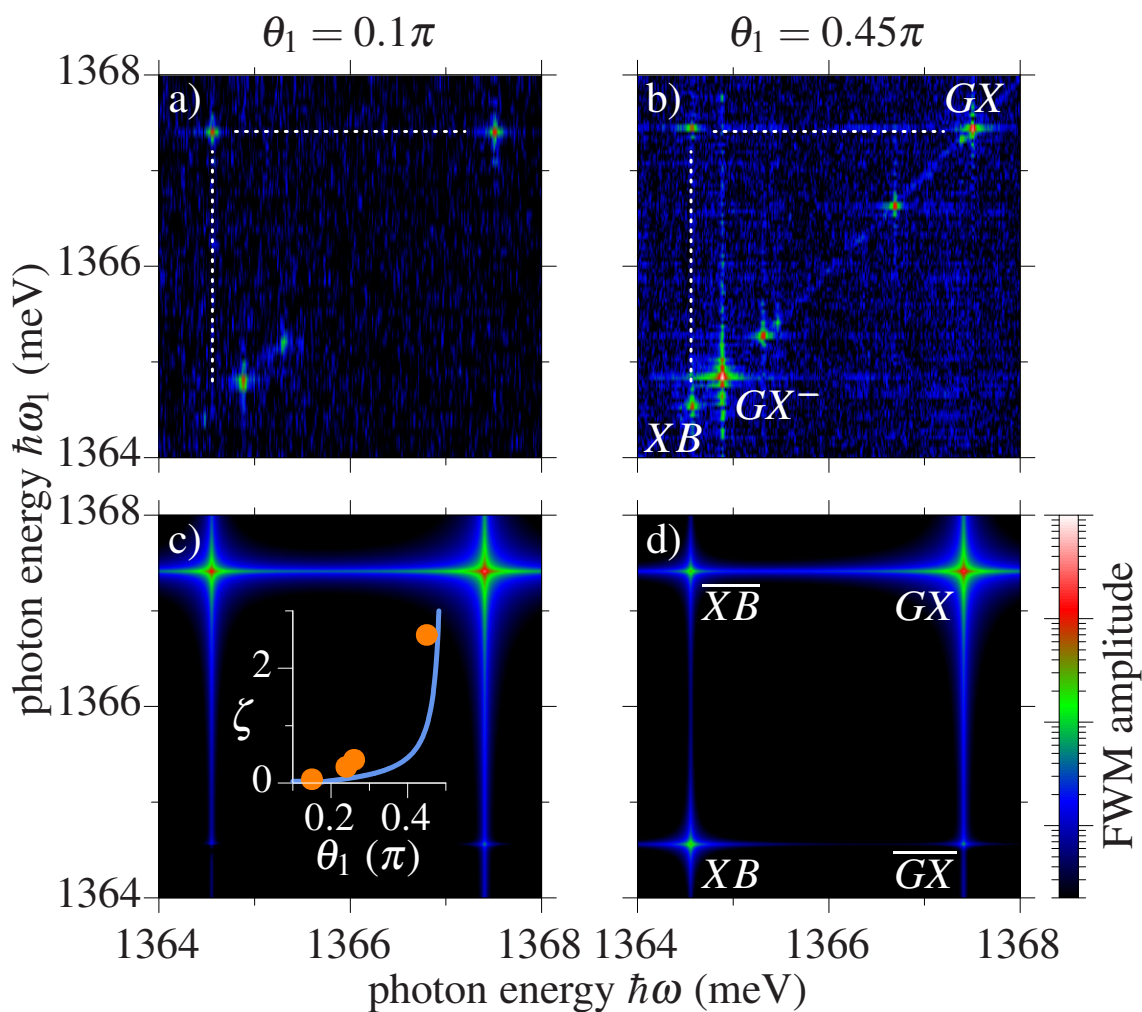


FIGURE 4.10 – **Couplage cohérent en fonction de l'aire d'impulsion.** Cartes 2D-FWM d'un système exciton-biexciton pour une aire d'impulsion pompe (a,c)  $\Theta_1 = 0.1 \pi$  et (b,d)  $\Theta_1 = 0.45 \pi$ . Haut : données expérimentales. Bas : simulations théoriques. L'encadré dans la figure (c) montre le ratio des intensités  $\zeta = I_{XB}/I_{\overline{XB}}$  entre le pic diagonal  $XB$  et hors diagonal  $\overline{XB}$ ; courbe bleue : théorie; points oranges : expérience.

Pour compléter cette étude, nous avons analysé la dépendance du couplage cohérent exciton-biexciton avec l'aire des impulsions. Les contributions FWM d'ordre supérieur, et donc les battements, sont supprimés à basse puissance d'excitation. Par conséquent, l'intensité des pics dépend fortement de la puissance d'excitation. Cet effet est illustré sur la figure 4.10, qui présente les spectres 2D-FWM d'un système  $GXB$  pour deux aires d'impulsion pompe de  $\Theta_1 = 0.1 \pi$  et  $\Theta_1 = 0.45 \pi$  ( $\Theta_2 = 2\Theta_1$ ). Les mesures expérimentales

présentées sur les figures 4.10 (a,b) sont parfaitement reproduites par des calculs théoriques illustrés sur les figures 4.10 (c,d). À faible puissance ( $\Theta_1 = 0.1 \pi$ ), on observe clairement le pic diagonal  $GX$ . Par ailleurs, le pic hors diagonal  $\overline{XB}$  apparaît clairement, tandis que le pic diagonal  $XB$  n'est pas visible. En effet, la cohérence  $\rho_{XB}$  n'est pas excitée quand  $\Theta_1$  est petit. Néanmoins l'aire de l'impulsion sonde, deux fois plus grande que celle de la pompe, excite à la fois  $\rho_{GX}$  et  $\rho_{XB}$ , et par conséquent le pic hors diagonal  $\overline{XB}$ , qui correspond aux interférences entre les deux transitions, est visible. Proche de  $\pi/2$  ( $\Theta_1 = 0.45 \pi$ ), l'intensité du pic hors diagonal  $\overline{XB}$  devient plus faible, tandis que le pic diagonal  $XB$  s'intensifie. L'encadré dans la figure 4.10 (c) montre le ratio des intensités  $\zeta = I_{XB}/I_{\overline{XB}}$  entre le pic diagonal  $XB$  et hors diagonal  $\overline{XB}$ , lequel augmente avec  $\Theta_1$ .

Tous ces résultats montrent la richesse des informations contenues dans les spectres 2D-FWM cachées dans les spectres 1D. Ces spectres 2D permettent d'identifier rapidement (moins de 30 minutes) des complexes excitoniques de manière très efficace.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude, combinant expérience et théorie, pour expliquer les mécanismes de couplage cohérent entre excitons. Les mesures expérimentales sont parfaitement reproduites par les équations de Bloch optiques appliquées à un système exciton-biexciton, incluant l'énergie de structure fine de l'exciton  $\delta$  et l'énergie de liaison du biexciton  $\Delta_b$ . Ces deux énergies donnent lieu à des battements temporels du signal FWM, permettant de mesurer très précisément l'écart entre les différents niveaux d'énergie du  $4\mathcal{LS}$ . Pour chaque mesure, nous avons extrait les temps de population  $T_1$  et de cohérence  $T_2$ . Par ailleurs, nous avons étudié la dépendance de l'angle de polarisation de l'excitation en configuration colinéaire et orthogonale. Plus précisément nous avons mis en évidence et mesuré le déphasage du biexciton via le processus de cohérence à deux photons, ainsi que l'interaction d'échange entre les deux excitons  $X$  et  $Y$ . En utilisant une technique de spectroscopie bidimensionnelle 2D-FWM, nous avons confirmé le couplage cohérent entre l'exciton et le biexciton neutre, et identifié des complexes excitoniques chargés dans une BQ unique. Pour aller plus loin, il serait intéressant de refaire l'expérience en contrôlant électriquement l'état de charge de la BQ. Cette technique permet également de mesurer les couplages cohérents entre deux BQs séparées [13], étape cruciale dans la réalisation d'un processeur quantique à plusieurs *qubits*. Plus généralement, les résultats obtenus démontrent que la technique 2D-FWM est un outil puissant pour analyser les dynamiques et les couplages cohérents de systèmes quantiques à plusieurs niveaux d'énergie. En utilisant des structures photoniques pour accroître le couplage optique, il serait possible d'étendre cette technique à d'autres sources de photons uniques comme les centres colorés dans le diamant [82], ou plus récemment découverts, les semiconducteurs d'épaisseurs atomiques [83, 84].

## Chapitre 5

# Fenêtrage temporel du signal de mélange à quatre ondes d'une boîte quantique unique

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>98</b>
<b>5.2</b>	<b>Protocole de conversion FWM/SWM</b>	<b>98</b>
5.2.1	Modèle analytique	98
5.2.2	Interprétation physique	101
<b>5.3</b>	<b>Choix de l'émetteur</b>	<b>101</b>
5.3.1	Identification et caractérisation d'un système à deux niveaux	101
<b>5.4</b>	<b>Conversion FWM/SWM</b>	<b>103</b>
5.4.1	Fenêtrage temporel du signal FWM	103
5.4.2	Façonnage spectral du signal FWM	104
<b>5.5</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>109</b>

---

Le contrôle cohérent d'un système quantique à deux niveaux, couramment appelé *qubit*, est à la base de l'informatique quantique. Atteignant des temps de cohérence ultra-long, la manipulation de spins nucléaires [85, 86], électroniques [87, 88] ou de centres colorés dans le diamant [89, 90] représentent aujourd'hui l'état de l'art en matière de contrôle cohérent. Contrôler la cohérence d'un exciton brillant est bien moins aisé du fait de sa forte interaction avec l'environnement solide qui limite sa cohérence, comme nous l'avons vu dans le chapitre 3. Cependant le couplage dipolaire d'un exciton avec la lumière est très efficace, rendant possible le contrôle *tout-optique* de sa cohérence. Ce chapitre présente les premières mesures de contrôle cohérent entièrement optique d'un exciton unique via un nouveau protocole de contrôle multi-ondes. Plus précisément, nous allons voir qu'il est possible de contrôler le signal FWM d'un exciton unique en ajustant la puissance et le délai d'un laser de contrôle permettant de convertir le signal FWM vers le signal de mélange à six ondes (SWM). Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [91].

## 5.1 Introduction

Une stratégie très attractive pour contrôler optiquement un réseau quantique solide (cf figure 5.1), consiste à coupler une paire d'excitons brillants confinés dans deux BQs séparées spatialement, en confinant les photons dans des nanostructures photoniques. Cela peut être réalisé par le biais de microcavités optiques [92, 38] ou de guides d'ondes photoniques [93, 94]. Extraire efficacement, manipuler et transférer les cohérences provenant d'excitons individuels est indispensable dans la réalisation de tels *qubits*. Dans ce contexte, nous démontrons dans ce chapitre la possibilité d'extraire et de manipuler la réponse cohérente d'un exciton unique en transférant le signal FWM vers celui de SWM. Ce nouveau protocole de contrôle optique ultra-rapide de la réponse non-linéaire d'un émetteur unique peut s'appliquer à une grande variété de systèmes quantiques couplés à la lumière. Les interférences produites entre les deux polarisations non-linéaires se traduisent par le façonnage de la réponse spectro-temporelle du signal FWM de l'émetteur. Ce type d'interférences, générées par la coexistence des polarisations non-linéaires de troisième et cinquième ordre, a été observé en physique atomique [95, 96, 97, 98, 99], ainsi qu'en physique du solide pour explorer les corrélations quantiques à plusieurs particules dans des puits quantiques [100, 101] et, plus récemment, pour mesurer les dynamiques non-Markovienne dans des ensembles de BQs [102, 103].

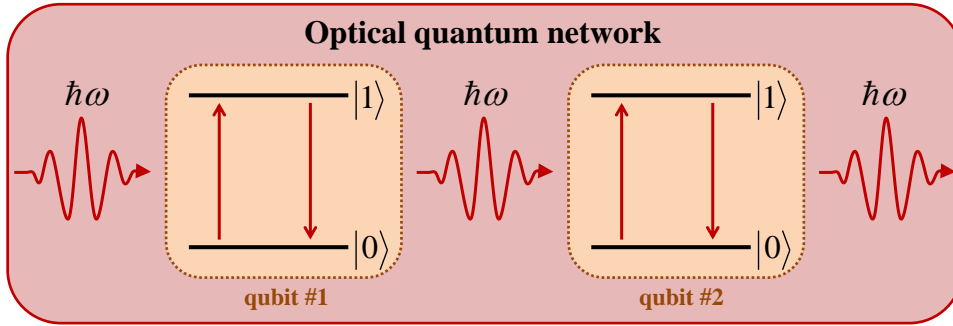


FIGURE 5.1 – Schéma d'un réseau quantique optique composé de deux *qubits*.

## 5.2 Protocole de conversion FWM/SWM

### 5.2.1 Modèle analytique

Dans cette partie, nous calculons les réponses non-linéaires FWM et SWM d'un  $2\mathcal{LS}$  formé par un état fondamental  $|0\rangle$  et un état excité  $|1\rangle$ . Le modèle utilisé traite de manière globale l'interaction d'un  $2\mathcal{LS}$  avec un champ optique, en tenant compte de tous les ordres d'excitation du champ et pas seulement des ordres trois et cinq comme c'est le cas pour des régimes de faible intensité (F. Fras, Institut Néel, CNRS). L'Hamiltonien semi-classique décrivant l'interaction d'un  $2\mathcal{LS}$  avec trois champs excitateurs est donné par  $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_I$ , tels que :

$$\mathcal{H}_0 = \hbar\omega_0|1\rangle\langle 1|, \quad (5.1a)$$

$$\mathcal{H}_I = \sum_{i=1}^3 \mu\mathcal{E}_i(t)e^{i(\omega_0(t-\tau_i)+\phi_i)}|0\rangle\langle 1| + c.c., \quad (5.1b)$$

où  $\omega_0$  correspond à la fréquence optique du  $2\mathcal{LS}$ ,  $\mu$  est le dipôle électrique de la BQ,  $\mathcal{E}_i(t)$  détermine l'amplitude du champ électrique effectif pour l'impulsion  $i$  à la position

de la BQ,  $\tau_i$  représente le temps d'arrivée de l'impulsion  $i$  à la position de la BQ et  $\phi_i$  correspond à la phase additionnelle induite par les AOM d'hétérodynage optique. En plus de l'évolution gouvernée par l'Hamiltonien  $\mathcal{H}$ , nous utilisons le formalisme de la matrice densité pour décrire les effets dissipatifs de l'environnement solide sur la réponse cohérente du  $2\mathcal{LS}$ . La durée des impulsions étant suffisamment courte par rapport aux processus de relaxation, nous assumons l'hypothèse d'une excitation instantanée, i.e.  $E_i(t) = \mathcal{E}_i \delta(t - \tau_i)$ , nous permettant de négliger l'interaction du  $2\mathcal{LS}$  avec l'environnement durant l'excitation. Sous cette hypothèse, l'évolution de la matrice densité après une série d'impulsions est obtenue analytiquement [104, 105] selon la transformation unitaire  $U(\Theta)$  :

$$\rho(\tau_i^+) = U(\Theta_i)\rho(\tau_i^-)U(\Theta_i)^\dagger, \quad (5.2a)$$

$$U(\Theta_i) = \cos \frac{\Theta_i}{2} [|0\rangle\langle 0| + |1\rangle\langle 1|] - i \sin \frac{\Theta_i}{2} [|0\rangle\langle 1|e^{i(\phi_i - \omega_0 \tau_i)} + c.c.], \quad (5.2b)$$

où  $\tau_i^{-(+)}$  désigne le temps juste avant (après) l'impulsion  $i$ , et  $\Theta_i = \int dt \mu |E_i(t)| / \hbar \sim \sqrt{P_i}$  est l'aire des impulsions. Durant le délai  $\tau_i$  entre les impulsions, le  $2\mathcal{LS}$  relaxe population et polarisation. Dans la limite Markovienne, l'évolution de la matrice densité est donnée par l'équation maîtresse de Lindblad :

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0, \rho] + \mathcal{L}(\rho) \quad (5.3)$$

où  $\mathcal{L}$  est le super-opérateur de dissipation. Il prend en compte la dissipation d'énergie due à l'émission spontanée et aux processus de déphasage pur. On note  $\gamma_1$  et  $\gamma_2^*$  les taux de ces deux processus de relaxation. La diffusion spectrale étant faible pour les BQs mesurées (cf figure 5.3 (c)), nous négligeons le déphasage inhomogène. Par conséquent  $\mathcal{L}$  s'écrit sous la forme suivante :

$$\mathcal{L}(\rho) = \gamma_1 [C\rho C^\dagger - \frac{1}{2} \{C^\dagger C, \rho\}_+] + \frac{1}{2} \gamma_2^* \left[ D\rho D - \frac{1}{2} \{D^2, \rho\}_+ \right] \quad (5.4)$$

où  $C = |1\rangle\langle 0|$  et  $D = |1\rangle\langle 1| - |0\rangle\langle 0|$ . La résolution de l'équation 5.3 donne accès à l'ensemble des dynamiques des populations et des cohérences du  $2\mathcal{LS}$  pour chaque ordre d'excitation. Les polarisations non-linéaires sont identifiées par leurs facteurs de phase  $e^{i\phi_n}$ , où la phase  $\phi_n$  est le résultat de la combinaison linéaire des phases des impulsions excitatrices successives telle que  $\phi_n = \sum_i a_i \phi_i$  avec  $a_i \in \mathbb{Z}^3$ . Pour cette expérience, nous sélectionnons les polarisations non-linéaires suivantes :

$$\mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{d}}(t) \propto \sin \Theta_1 \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} \left( H(t) - \sin^2 \frac{\Theta_3}{2} H(t - \tau_{23}) \right) e^{-t\gamma_2} e^{i(\omega_0(t - \tau_{12}) + \phi_{\text{FWM}}^{\text{d}})} \quad (5.5a)$$

$$\mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{nd}}(t) \propto \sin \Theta_1 \sin \Theta_2 \sin \Theta_3 H(t - \tau_{23}) e^{-(t - \tau_{23} + \tau_{12})\gamma_2 - \tau_{23}\gamma_1} e^{i(\omega_0(t - \tau_{23} + \tau_{12}) + \phi_{\text{FWM}}^{\text{nd}})} \quad (5.5b)$$

$$\mathcal{P}_{\text{SWM}}^{\text{d}}(t) \propto \sin \Theta_1 \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} \sin^2 \frac{\Theta_3}{2} H(t - \tau_{23}) e^{-t\gamma_2} e^{i(\omega_0(t - 2\tau_{23} + \tau_{12}) + \phi_{\text{SWM}}^{\text{d}})} \quad (5.5c)$$

avec :

$$\phi_{\text{FWM}}^{\text{d}} = 2\phi_2 - \phi_1 \quad (5.6)$$

$$\phi_{\text{FWM}}^{\text{nd}} = \phi_3 + \phi_2 - \phi_1 \quad (5.7)$$

$$\phi_{\text{SWM}}^{\text{d}} = 2\phi_3 - 2\phi_2 + \phi_1 \quad (5.8)$$

où  $H(t)$  est la fonction de Heaviside,  $A$  un coefficient d'amplitude,  $\gamma_2 = \gamma_1/2 + \gamma_2^*$  et  $(\tau_1, \tau_2, \tau_3) = (-\tau_{12}, 0, \tau_{23})$  avec  $\tau_{ij} = \tau_j - \tau_i$  tel que  $\tau_{12} > 0$  et  $\tau_{23} > 0$  (cf figure 5.2). Notons que l'équation 5.5a est équivalente à l'équation 1.27 du chapitre 1 pour  $(\Theta_1, \Theta_2, \Theta_3) = (\pi/2, \pi, 0)$ . La transformée de Fourier des équations 5.5 par rapport au temps exprime l'amplitude des polarisations FWM et SWM que l'on mesure spectralement au cours de l'expérience :

$$\mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{d}}(\omega) \propto \sin \Theta_1 \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} \frac{e^{-\tau_{12}\gamma_2} (1 - \sin^2 \frac{\Theta_3}{2} e^{\tau_{23}(i\Delta\omega - \gamma_2)})}{\sqrt{2\pi}(\gamma_2 - i\Delta\omega)} \quad (5.9a)$$

$$\mathcal{P}_{\text{FWM}}^{\text{nd}}(\omega) \propto \sin \Theta_1 \sin \Theta_2 \sin \Theta_3 \frac{e^{-\tau_{12}\gamma_2 - \tau_{23}\gamma_1}}{\sqrt{2\pi}(\gamma_2 - i\Delta\omega)} \quad (5.9b)$$

$$\mathcal{P}_{\text{SWM}}^{\text{d}}(\omega) \propto \sin \Theta_1 \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} \sin^2 \frac{\Theta_3}{2} \frac{e^{-(\tau_{12} + \tau_{23})\gamma_2}}{\sqrt{2\pi}(\gamma_2 - i\Delta\omega)} \quad (5.9c)$$

où  $\Delta\omega = \omega_0 - \omega$  et les phases  $\phi_n$  sont volontairement omises.

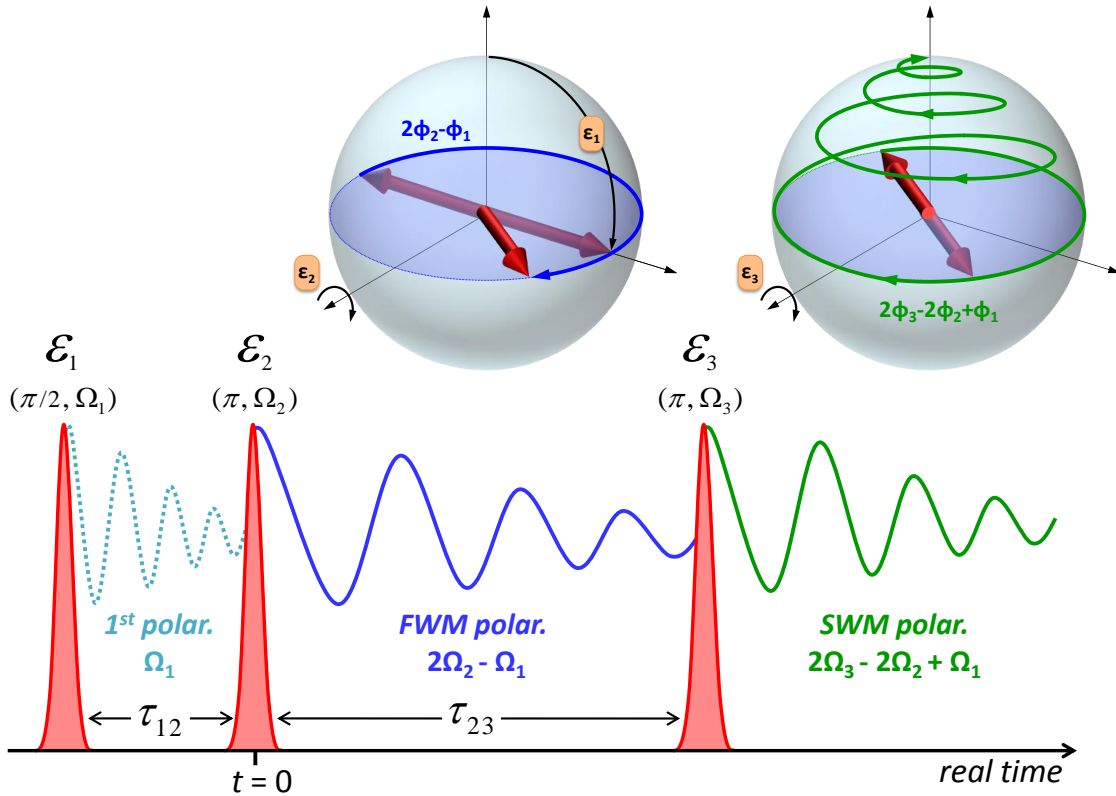


FIGURE 5.2 – Évolution temporelle des polarisation FWM et SWM. La polarisation FWM (bleu) est générée par les impulsions  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$  arrivant respectivement à  $t = -\tau_{12}$  et  $t = 0$ , telles que  $(\Theta_1, \Theta_2) = (\pi/2, \pi)$ . Durant le délai  $\tau_{23}$ , la polarisation FWM évolue librement. L'impulsion  $\mathcal{E}_3$ , arrivant à  $t = \tau_{23}$ , convertit la polarisation FWM en polarisation SWM (vert). L'efficacité de conversion FWM/SWM est maximale pour  $\Theta_3 = \pi$ .



### 5.2.2 Interprétation physique

Les relations 5.5 décrivent le principe de l'expérience de contrôle cohérent dont il est question dans ce chapitre. Elles illustrent explicitement les dynamiques temporelles du  $2\mathcal{LS}$  induites par la troisième impulsion, que l'on appellera l'impulsion de contrôle, qui permet de convertir le signal FWM vers le signal SWM. Cette conversion est uniquement gouvernée par l'aire de l'impulsion  $\Theta_3$  et le délai  $\tau_{23}$ . Réciproquement, ces deux paramètres permettent de façonner la réponse spectrale du signal FWM, comme le montre les équations 5.9.

La figure 5.2 illustre l'évolution temporelle des polarisations non-linéaires FWM et SWM, ainsi que l'évolution du vecteur de Bloch après chaque impulsion. La première impulsion modulée à la fréquence  $\Omega_1$ , engendre la polarisation de premier ordre maximale pour  $\Theta_1 = \pi/2$ . Cette polarisation correspondant à l'évolution libre des cohérences du  $2\mathcal{LS}$  dans le plan équatorial de la sphère de Bloch durant le délai  $\tau_{12}$ . La deuxième impulsion modulée à la fréquence  $\Omega_2$ , crée la polarisation D-FWM maximale pour  $\Theta_2 = \pi$ , sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Cette polarisation évolue librement au cours du délai  $\tau_{23}$  (flèche bleue). Si  $\tau_{23} \gg T_2$ , la polarisation D-FWM est complètement relaxée, et la polarisation D-SWM ne peut plus être créée par la troisième impulsion étant donné que le  $2\mathcal{LS}$  est retourné dans son état fondamental. Par contre, si  $\tau_{23} \ll T_2$ , la troisième impulsion modulée à la fréquence  $\Omega_3$ , va convertir la polarisation D-FWM vers la polarisation D-SWM, avec une conversion maximale pour  $\Theta_3 = \pi$ , sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega_1$ . Cette polarisation évolue librement durant la relaxation du  $2\mathcal{LS}$  vers l'état fondamental (flèche verte). Le choix de la fréquence hétérodyne permet de sélectionner la polarisation mesurée spectralement.

## 5.3 Choix de l'émetteur

### 5.3.1 Identification et caractérisation d'un système à deux niveaux

Un  $2\mathcal{LS}$  optiquement actif est requis pour réaliser ce type d'expérience. Dans les BQs, c'est le cas pour les excitons chargés négativement (trions), où la structure des niveaux d'énergie peut être réduite (en négligeant la dégénérescence du spin) à deux niveaux seulement : l'état fondamental composé d'un électron sur la couche  $S$  ( $1e^1$ ) et l'état excité correspondant à deux électrons et un trou sur la couche  $S$  ( $1e^21h^1$ ). Les échantillons utilisés étant dopés négativement, cette transition excitonique est la plus favorable.

La figure 5.3 (a) illustre la réponse cohérente d'un trion dans le spectre d'interférence FWM à la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Le spectre d'interférence SWM correspondant est mesuré sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega_1$ . Basée sur une série d'interférogrammes, nous reconstruisons ensuite une image FWM hyperspectrale d'une zone de l'échantillon, représentée sur la figure 5.3 (b) afin de repérer la position spatiale et spectrale des BQs les plus brillantes. Les pics localisés les plus intenses proviennent essentiellement de la réponse FWM générée par des trions.

Dans un premier temps, nous mesurons les dynamiques des cohérences et des populations du trion. En mesurant le signal ND-FWM modulé à la fréquence hétérodyne  $\Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$ , et en variant le délai  $\tau_{23}$ , nous pouvons suivre l'évolution temporelle des populations du trion (cf carrés rouges sur la figure 5.3 (c)). Le déclin exponentiel nous renseigne sur le temps de vie du trion  $T_1 = 390 \pm 10$  ps. Inversement, en variant le délai  $\tau_{12}$ , nous mesurons le déclin des cohérences via le signal D-FWM sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$  (ronds verts). L'absence de signal pour les délais négatifs et la suppression des oscillations liées à la structure fine confirme la nature trionique de cette transition (cf

chapitre 4). Ce trion est sensible à la diffusion spectrale (écho de photon résiduel). En fixant  $T_2 = 2T_1$ , nous trouvons une largeur inhomogène  $\sigma = 3 \pm 1 \mu\text{eV}$  (cf chapitre 3).

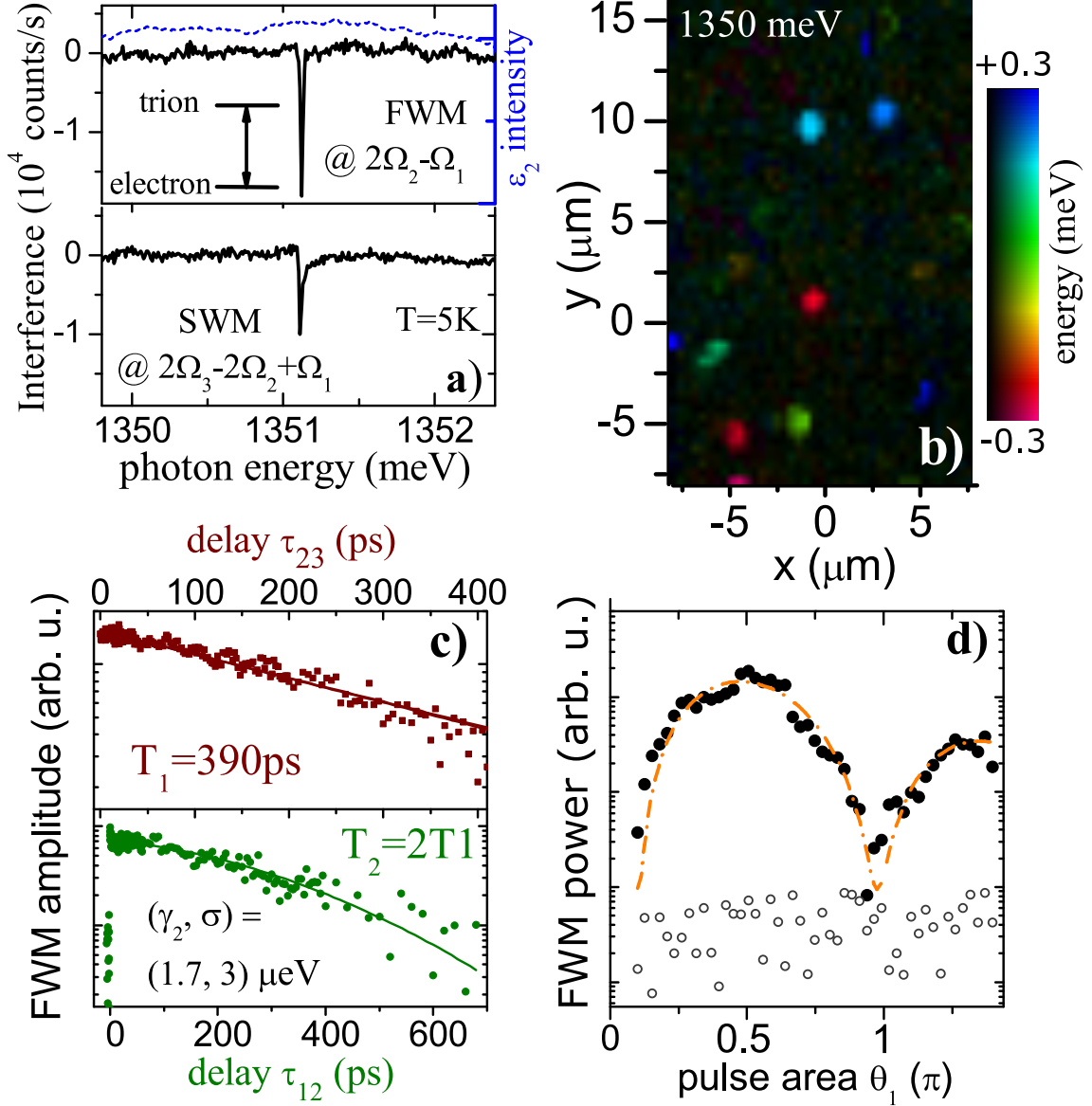


FIGURE 5.3 – Identification et caractérisation d'un trion unique pour l'expérience de contrôle cohérent. (a) Interférences spectrales d'un trion unique mesurées aux fréquences hétérodes  $2\Omega_2 - \Omega_1$  (haut) et  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega_1$  (bas). Notons que les deux interférogrammes sont obtenus pour le même temps d'intégration (20 secondes). Le spectre d'excitation est représenté par les traits pointillés bleus. (b) Image hyperspectrale ( $\omega = 1350 \pm 0.3$  meV) du signal FWM de BQs individuelles. (c) Dynamiques des populations (carrés rouges) et des cohérences (ronds verts) d'un trion unique limité radiativement ( $T_2 = 2T_1$ ), pour lequel on mesure un déclin radiatif  $T_1 = 390 \pm 10$  ps, et une largeur inhomogène  $\sigma = 3 \pm 1 \mu\text{eV}$ . (d) Oscillations de Rabi du signal FWM en fonction de  $\Theta_1$  ( $\Theta_2 = 2\pi/3$ ). Les aires d'impulsions  $(\Theta_1, \Theta_2) = (\pi/2, \pi)$  correspondent aux puissances  $(P_1, P_2) = (275, 900)$  nW. Traits pointillés oranges : courbe de prédiction  $\sin^2 \Theta_1 \exp(-\Gamma_2 t)$ , où  $\Gamma_2$  représente le taux de déphasage pur pendant l'excitation (cf chapitre 3).

Précédemment, nous avons vu que l'aire de l'impulsion de contrôle  $\Theta_3$  est un paramètre important lors de la conversion FWM vers SWM. L'expérience de contrôle cohérent décrite dans ce chapitre requiert donc un ajustement précis des aires d'impulsions  $\Theta_i = \int dt \mu |E_i(t)| / \hbar \sim \sqrt{P_i}$ . Pour calibrer précisément les aires de chaque impulsion, nous mesurons les oscillations de Rabi du signal FWM en fonction de  $\Theta_1$  comme le montre la figure 5.3 (d). Le premier maximum ( $\Theta_1 = \pi/2$ ) nous permet de définir les puissances des trois faisceaux  $(P_1, P_2, P_3) = (275, 900, 900)$  nW correspondant aux aires d'impulsions  $(\Theta_1, \Theta_2, \Theta_3) = (\pi/2, \pi, \pi)$  nécessaires pour maximiser la conversion FWM/SWM.

## 5.4 Conversion FWM/SWM

### 5.4.1 Fenêtrage temporel du signal FWM

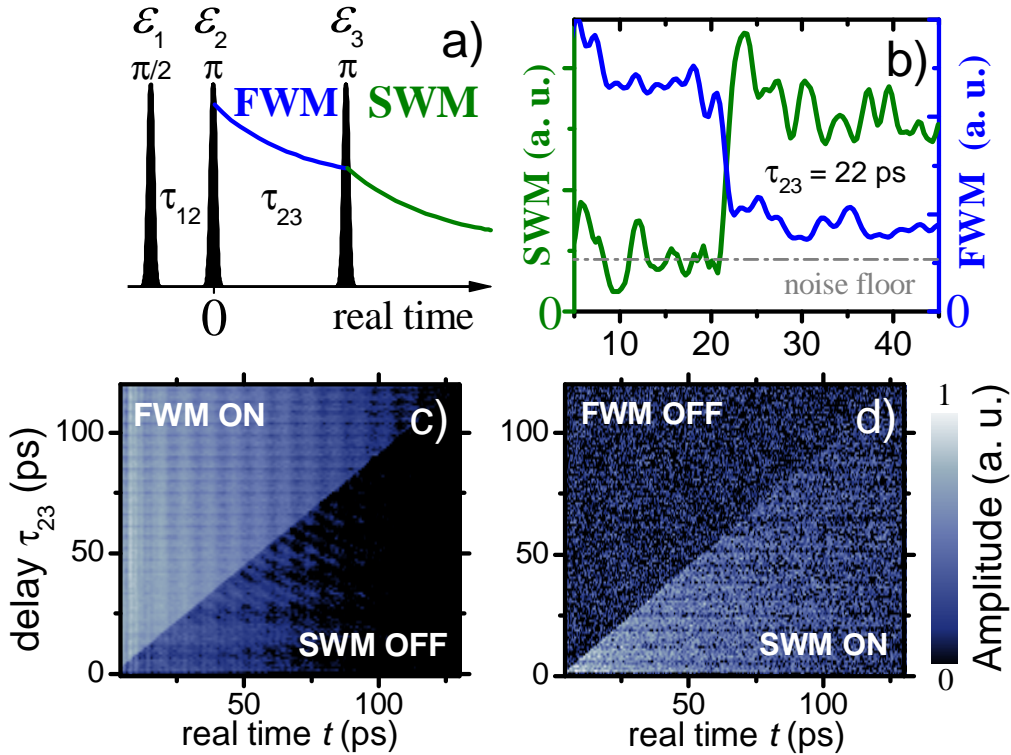


FIGURE 5.4 – Fenêtrage temporel du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$ . (a) Schéma de l'expérience représentant la séquence d'impulsions et l'évolution temporelle des polarisations non-linéaires après chaque impulsion. (b) Démonstration de la suppression (création) de la polarisation FWM (SWM), courbe bleue (verte), à l'arrivée de  $\mathcal{E}_3$  pour  $t = \tau_{23} = 22$  ps et  $\Theta_3 = 0.8 \pi$ . Le niveau de bruit est représenté par les traits pointillés gris. (c) Signal FWM et (d) SWM en fonction du temps  $t$  et du délai  $\tau_{23}$  pour  $\Theta_3 = 0.8 \pi$ . Dans cette représentation, le signal FWM (SWM) apparaît au-dessus (en-dessous) de la diagonale  $t = \tau_{23}$  définie par l'arrivée de  $\mathcal{E}_3$ . L'amplitude du signal est donnée par l'échelle linéaire de couleur. La résolution du spectromètre limite la mesure aux temps longs ( $t > 100$  ps).

Le modèle analytique décrit précédemment, prédit que les polarisations non-linéaires D-FWM et D-SWM d'un  $2\mathcal{L}\mathcal{S}$  peuvent être contrôlées uniquement par l'aire de l'impulsion  $\Theta_3$  et le délai  $\tau_{23}$  (cf équations 5.5). La figure 5.4 (b) montre la preuve expérimentale de

ce transfert de polarisations non-linéaires. En fixant le délai  $\tau_{23} = 22$  ps et en mesurant le signal FWM sur la fréquence  $2\Omega_2 - \Omega$  et le signal SWM sur la fréquence  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega$  au cours du temps, on observe à  $t = \tau_{23}$ , une chute du signal FWM au moment où le signal SWM, absent pour  $t < \tau_{23}$ , augmente de manière quasi-instantanée pour atteindre une amplitude constante, tandis que le signal FWM atteint pratiquement le niveau du bruit. La suppression de la polarisation FWM n'est pas totale car  $\Theta_3 = 0.8 \pi$  pour cet exemple. En regardant les équations 5.5a et 5.5c, on remarque que l'efficacité de conversion FWM/SWM atteint l'unité pour  $\Theta_3 = \pi$ . Les figures 5.4 (c,d) présentent l'évolution des polarisations FWM et SWM au cours du temps en fonction de délai  $\tau_{23}$ . L'arrivée de l'impulsion de contrôle  $\mathcal{E}_3$  génère le transfert entre les deux polarisations défini par la diagonale  $t = \tau_{23}$ . Pour  $t < \tau_{23}$ , correspondant à la partie supérieure par rapport à la diagonale, seulement le signal émis sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_2 - \Omega_1$  est détecté. À l'inverse, pour la partie inférieure correspondant à  $t > \tau_{23}$ , seul le signal émis sur la fréquence hétérodyne  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega_1$  est détecté. Ces mesures sont en parfait accord avec les prédictions théoriques.

#### 5.4.2 Façonnage spectral du signal FWM

En jouant sur la contribution de chaque polarisation non-linéaire, cet interrupteur temporel gouverné par  $\tau_{23}$  et  $\Theta_3$  permet de manipuler l'émission cohérente du trion avec un temps de commutation de l'ordre de la picoseconde. La figure 5.5 montre l'évolution de la forme de raie spectrale d'un trion, mesurée spectralement par le spectromètre (ici  $\Theta_3 = \pi$ ). Lorsque  $\tau_{23} \gg T_2$ , l'intégralité de la polarisation FWM générée durant le temps de vie du trion est intégrée. Lorsque l'impulsion de contrôle arrive, la conversion FWM/SWM n'est plus possible (plus de polarisation FWM). Le signal FWM mesuré est donc uniquement relié à la relaxation du trion et correspond à un pic lorentzien de largeur homogène (FWHM)  $\gamma_2 = 38 \mu\text{eV}$  (limite de résolution du spectromètre). En réduisant  $\tau_{23}$  jusqu'à quelques dizaines picosecondes, la polarisation FWM est *brutalement* stoppée pour être convertie vers la polarisation SWM (non montré sur cette figure). Cette arrêt brutal, que l'on peut assimiler à un fenêtrage temporel du signal FWM, ce traduit spectralement par l'apparition de lobes latéraux autour de la fréquence centrale. Le signal FWM intégré sur la fréquence  $2\Omega_2 - \Omega_1$  correspond à une fraction du signal total émis par le trion. Il en résulte un élargissement conséquent allant jusqu'à  $\gamma_2 = 275 \mu\text{eV}$  pour  $\tau_{23} = 15$  ps, soit trois ordres de grandeurs plus large que la largeur homogène mesurée sur la figure 5.3 (c).

L'amplitude du signal FWM que l'on mesure spectralement est donnée par le module de l'expression 5.9a :

$$S_{\text{FWM}}^{\text{d}}(\omega) \propto \sin \Theta_1 \sin^2 \frac{\Theta_2}{2} e^{-\tau_{12}\gamma_2} \times \left( \frac{1 + \sin^4 \frac{\Theta_3}{2} e^{-2\tau_{23}\gamma_2} - 2 \sin^2 \frac{\Theta_3}{2} e^{-\tau_{23}\gamma_2} \cos(\Delta\omega\tau_{23})}{2\pi(\gamma_2^2 + \Delta\omega^2)} \right)^{1/2} \quad (5.10)$$

En remplaçant  $(\Theta_1, \Theta_2, \Theta_3) = (\frac{\pi}{2}, \pi, \pi)$ , l'équation 5.10 se simplifie sous la forme :

$$S_{\text{FWM}}^{\text{d}}(\omega) \propto \left( \frac{\cosh(\gamma_2\tau_{23}) - \cos(\Delta\omega\tau_{23})}{\pi(\gamma_2^2 + \Delta\omega^2)} \right)^{1/2} \quad (5.11)$$

Cette équation reproduit quantitativement les mesures, comme le montre les courbes rouges sur les figures 5.5 (e-g). L'élargissement spectral du pic central est donné par

$2\pi\hbar/\tau_{23}$ , caractéristique d'une fonction sinus cardinal. Cet élargissement artificiel peut atteindre 10 meV, la limite étant la largeur spectrale des impulsions. La figure 5.6 montre l'évolution de cet élargissement pour  $\tau_{23} \gg T_2$  jusqu'à  $\tau_{23} = 5$  ps. A partir de  $\tau_{23} = 10$  ps, l'amplitude du signal FWM est trop faible pour résoudre spectralement l'élargissement de la raie.

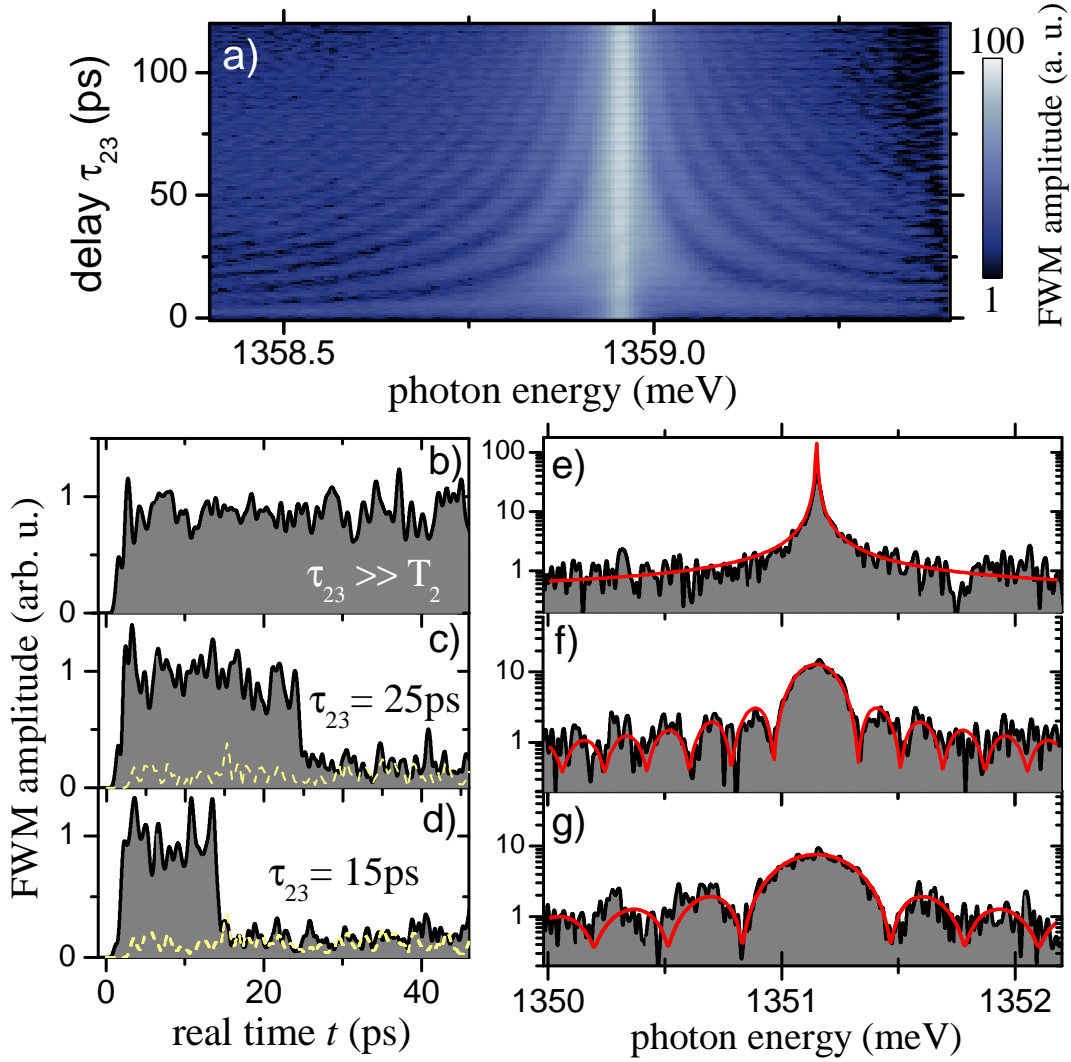


FIGURE 5.5 – Façonnage spectral du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$ . (a) Signal FWM mesuré spectralement montrant l'évolution de la forme de raie FWM en fonction de  $\tau_{23}$  ( $\Theta_3 = 0.8\pi$ ). L'amplitude du signal FWM est représentée par la barre de couleur (échelle log). (b-d) Transitoires FWM générés pour  $\tau_{23} \gg T_2$ , 25 ps et 15 ps ( $\tau_{12} = 0.2$  ps,  $\Theta_3 = \pi$ ). Le niveau de bruit est représenté par les traits pointillés jaunes. (e-g) Spectres FWM obtenus par transformée de Fourier de (b-d), montrant l'élargissement spectral de la raie centrale et l'apparition de lobes latéraux (sinus cardinal) dus au fenêtrage temporel du signal FWM. Courbes rouges : prédictions analytiques correspondant à l'équation 5.10.

Pour des valeurs intermédiaires de  $\Theta_3$ , la polarisation FWM est partiellement coupée et convertie vers la polarisation SWM. Par conséquent, les deux polarisations coexistent. La figure 5.7 présente les mesures temporelles (a) et spectrales (b) de la polarisation FWM pour  $\Theta_3 = 0.4\pi \rightarrow \pi$  ( $\tau_{23} = 20$  ps). En raison de l'augmentation de la suppression de la

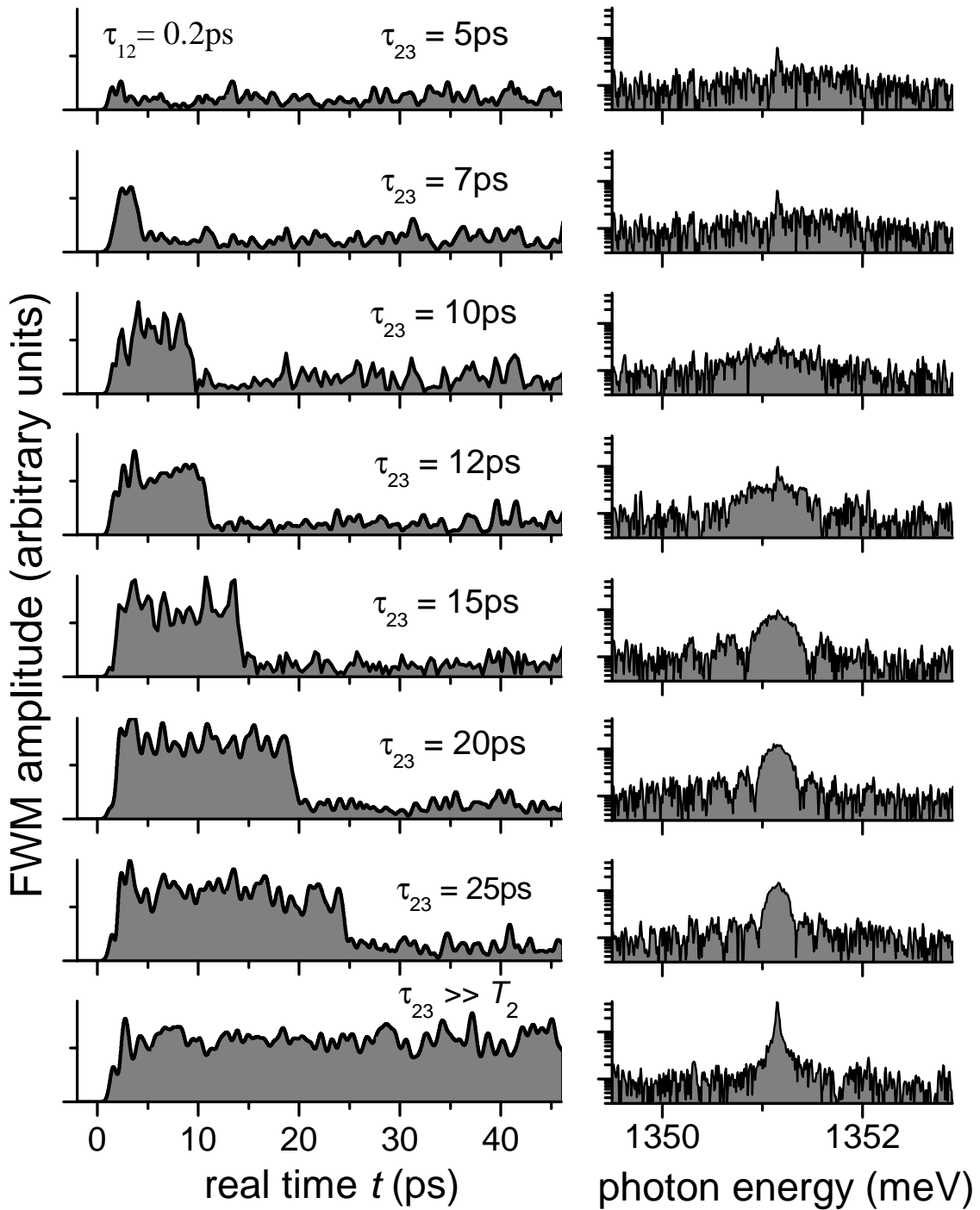


FIGURE 5.6 – Façonnage spectral du signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$ . Évolution temporelle (à gauche) et spectrale (à droite) de la polarisation FWM d'un trion pour  $\tau_{12} = 0.2$  ps et  $\Theta_3 = \pi$ . A partir de  $\tau_{23} = 10$  ps, le signal FWM intégré est trop faible pour mesurer spectralement l'élargissement de la raie.

polarisation FWM pour  $t > 20$  ps, l'amplitude du pic spectralement fin provenant de la relaxation du trion est graduellement réduite jusqu'à être complètement supprimée pour  $\Theta_3 = \pi$ . À l'inverse, le lobe central et les lobes secondaires, résultant du fenêtrage temporel du signal FWM, se développent de plus en plus à mesure que le fenêtrage augmente. L'équation 5.10 reproduit parfaitement les données expérimentales, comme le montre la figure 5.7 (b,d).

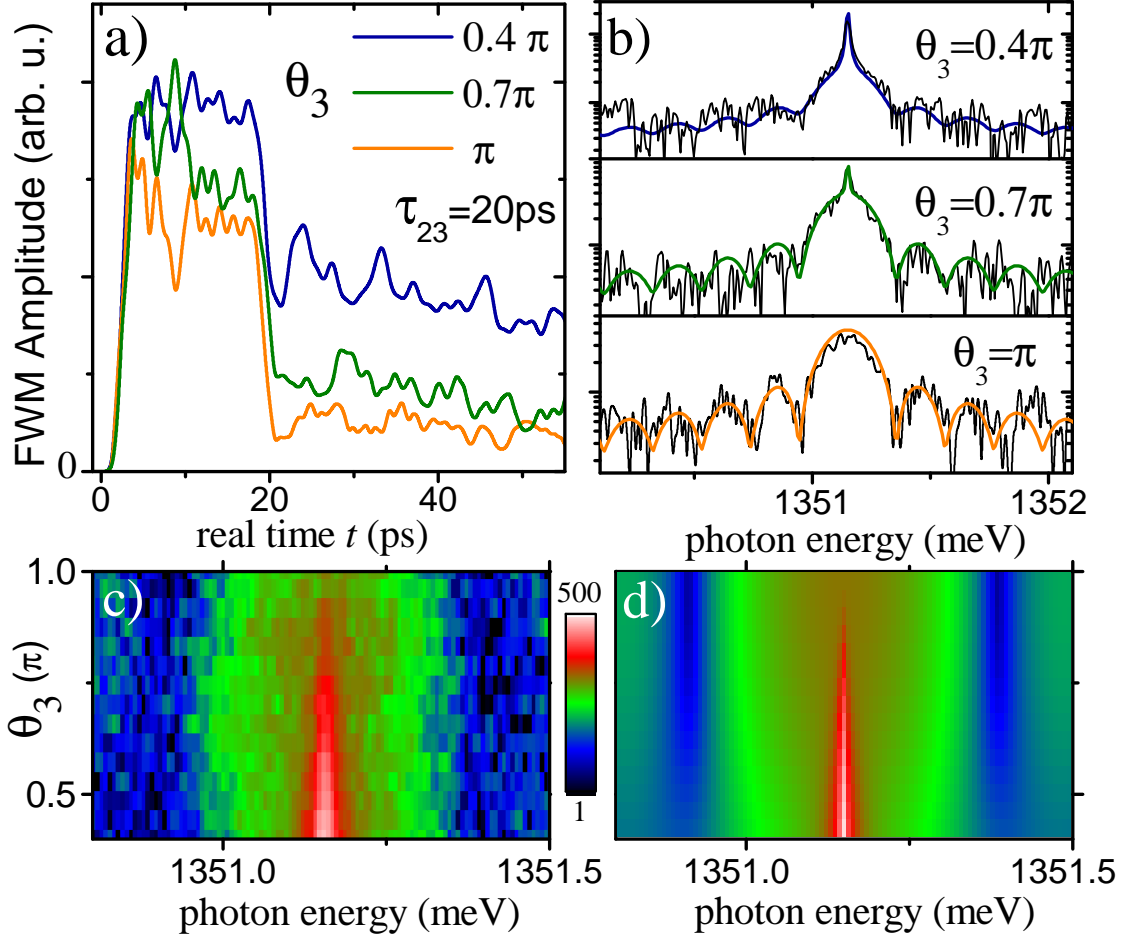


FIGURE 5.7 – Façonnage spectral du signal FWM en fonction de l'aire d'impulsion  $\Theta_3$ . (a) Fenêtrage temporel du signal FWM pour  $\Theta_3 = 0.4\pi, 0.7\pi$  et  $\pi$  en bleu, vert et orange respectivement ( $\tau_{12}; \tau_{23} = 0.2; 20$  ps). La suppression du signal FWM augmente avec  $\Theta_3$  et atteint le maximum pour  $\Theta_3 = \pi$ . (b) Façonnage spectral du signal FWM obtenu par transformée de Fourier de (a). Courbes bleue, verte et orange : prédictions analytiques correspondant à l'équation 5.10. (c) Mesure et (d) simulation théorique du signal FWM en fonction de  $\Theta_3$  (délais  $\tau_{12}$  et  $\tau_{23}$  identiques à (a,b)). On observe la suppression progressive de la raie du trion. L'amplitude du signal FWM est donnée par la barre de couleur (échelle log).

Tous ces résultats montrent qu'il est possible de filtrer temporellement et spectralement le signal FWM d'un trion unique. Le protocole proposé permet de créer "à la demande" des formes de raies artificielles en contrôlant simplement deux paramètres :  $\Theta_3$  et  $\tau_{23}$ . La capacité à manipuler à volonté la largeur spectrale d'une raie excitonique fournit un nouveau degré de liberté vers le contrôle optique de tels *qubits*. Qui plus est, nous mettons l'accent sur le fait que la modification de phase induite par la conversion FWM/SWM mo-

diffie l'oscillation cohérente du dipôle. Il apparaît ainsi que la polarisation totale du trion est altérée par rapport au cas sans  $\mathcal{E}_3$ , comme le montre la figure 5.8. Cela se manifeste très clairement lorsque  $\mathcal{E}_3$  est modulée à la fréquence  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Les polarisations FWM et SWM sont alors modulées sur la même fréquence hétérodyne correspondant à la fréquence dégénérée  $2\Omega_2 - \Omega_1$ . Le signal mesuré sur cette fréquence correspond à la polarisation totale (FWM + SWM). Lorsque  $\tau_{23} = 0$ , les deux polarisations non-linéaires oscillent en phase. En ajustant le délai  $\tau_{23}$ , il est possible d'introduire une variation de phase entre les deux polarisations et de modifier directement l'oscillation du dipôle.

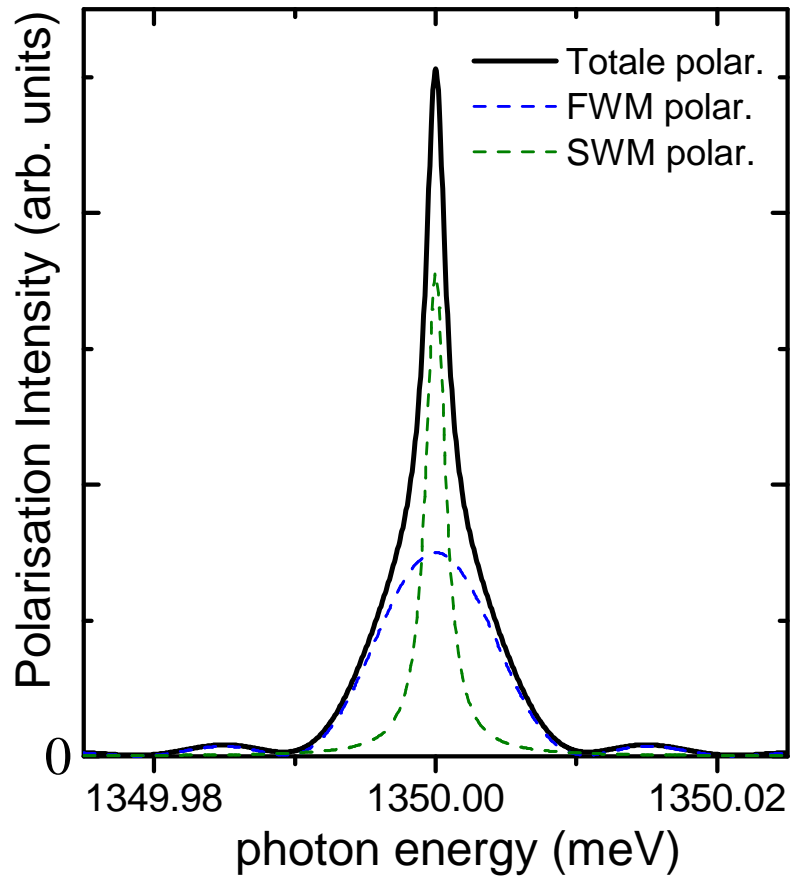


FIGURE 5.8 – **Façonnage spectral de la polarisation totale.** Simulation de la polarisation totale du dipôle (trait noir) pour  $(\Theta_1, \Theta_2, \Theta_3) = (\pi/2, \pi, \pi)$  et  $\tau_{23} = 390$  ps ( $T_2 = 780$  ps). Pour un tel délai, les aires des polarisations FWM (pointillés bleus) et SWM (pointillés verts) sont pratiquement équivalentes, afin de maximiser les interférences spectrales entre ces deux polarisations.



## 5.5 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre, nous proposons un nouveau protocole de contrôle cohérent de la réponse non-linéaire d'un  $2\mathcal{LS}$  rendu possible grâce à l'ajout d'un troisième laser de contrôle. Nous avons montré que la conversion FWM/SWM permet de contrôler temporellement et spectralement le signal FWM d'un  $2\mathcal{LS}$  uniquement en variant la puissance et le temps d'arrivée de la troisième impulsion. Plus généralement, l'extension de ce protocole vers le contrôle cohérent multi-ondes, conceptuellement simple, donne accès aux polarisations d'ordres supérieurs. La conversion étant totale pour des impulsions  $\pi$ , il semblerait qu'aucune limitation physique n'entrave la réalisation d'un dispositif expérimental plus complexe de *mélange à huit ondes* ou plus. La technique présentée dans ce chapitre apparaît donc comme un outil polyvalent pour manipuler les non-linéarités optiques de systèmes quantiques individuels, et ouvre la voie sur l'étude des corrélations quantiques d'ordre supérieur impliquant plus que deux excitons par BQ [101], ou encore sur l'étude des processus de déphasage non-Markovien [102].

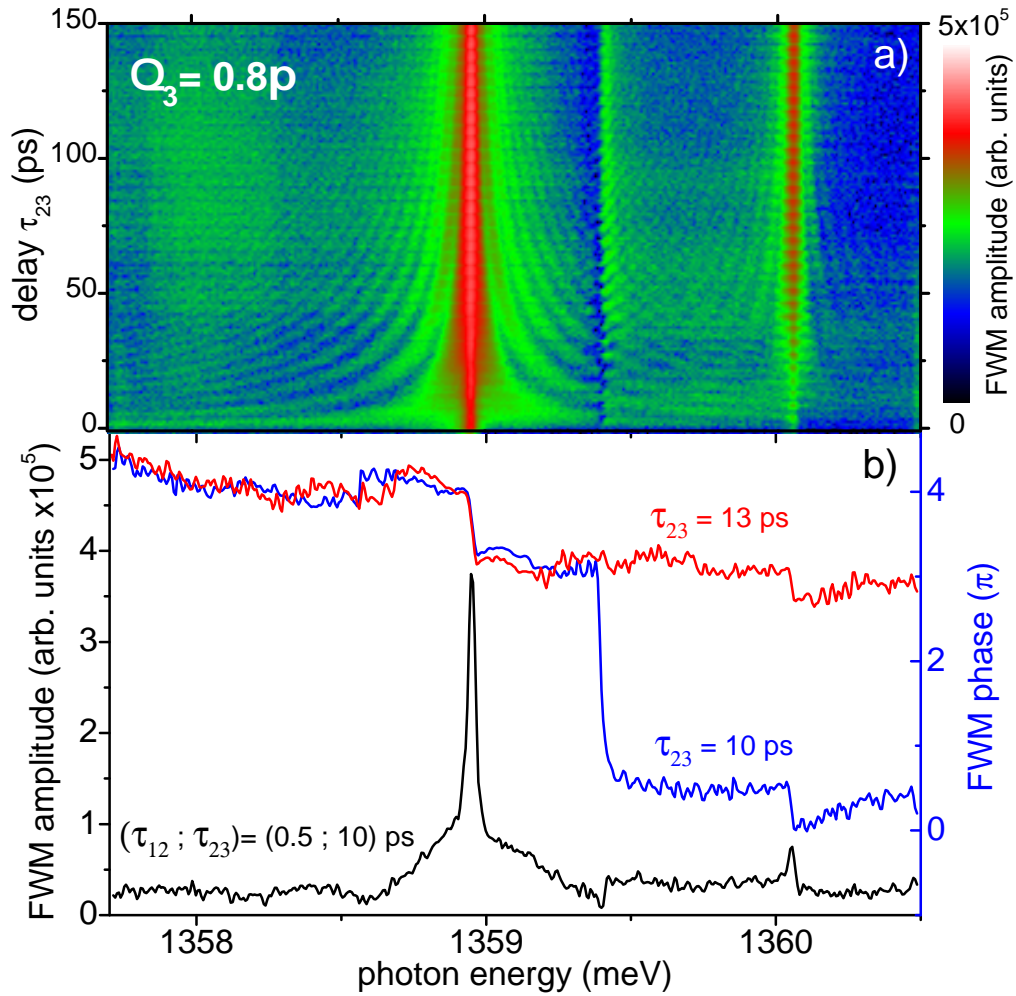


FIGURE 5.9 – Interférences des polarisations FWM de trois transitions excitoniques. (a) Signal FWM en fonction du délai  $\tau_{23}$  pour  $\Theta_3 = 0.8 \pi$  et  $\tau_{12} = 0.5$  ps. L'amplitude du signal FWM est donnée par la barre de couleur (échelle log). (b) Amplitude (noir) et phase du signal FWM pour  $\tau_{23} = 10$  ps (bleu) et  $\tau_{23} = 13$  ps (rouge).

Une perspective séduisante serait d'appliquer cette technique sur une paire de BQs couplées radiativement [106], dans le but de réaliser un contrôle quantique non-local. La figure 5.9 (a) montre l'évolution du signal FWM de trois transitions excitoniques séparées de 1 meV, en fonction du délai  $\tau_{23}$ . Quand  $\tau_{23}$  est suffisamment petit, typiquement  $\tau_{23} < 10$  ps, le piédestal de la transition à basse énergie est élargi de plusieurs meV, recouvrant spectralement les deux autres transitions à plus haute énergie. Une partie de la polarisation issue de cette transition interfère avec les polarisations des autres transitions. Le battement rapide de l'amplitude FWM observé pour chaque transition en est la preuve directe. De plus, il est intéressant de remarquer que la transition à 1359.4 meV interfère de manière équivalente avec les polarisations des deux autres transitions. En fonction du délai  $\tau_{23}$ , la phase de cette transition varie entre 0 (rouge) et  $2\pi$  (bleu) selon que les interférences sont destructives ou constructives comme le montre la figure 5.9 (b). Ce résultat montre qu'il est possible de contrôler l'amplitude et la phase de la polarisation d'une transition excitonique.

Pour aller plus loin, imaginons une structure en forme de guide d'onde photonique gravée dans la microcavité optique, comprenant deux BQs séparées spatialement (de plusieurs  $\mu\text{m}$ ), et proche spectralement (moins de 0.5 meV), comme représenté sur la figure 5.10. Il serait possible de coupler radiativement ces deux BQs à travers leurs polarisations FWM suivant le protocole suivant. Deux impulsions  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ , telles que  $(\Theta_1, \Theta_2) = (\pi/2, \pi)$ , sont focalisées sur la BQ#1 pour créer la polarisation FWM. Une partie de cette polarisation est guidée à travers le guide d'onde et interfère avec la BQ#2. En utilisant une troisième impulsion  $\mathcal{E}_3$  telle que  $\Theta_3 = \pi$ , il serait possible d'utiliser la polarisation FWM de la BQ#1 pour générer la polarisation SWM de la BQ#2, et de collecter cette polarisation via le mode de la cavité. Suivant ce protocole, la polarisation SWM de la BQ#2 ne peut être créée que par la polarisation FWM de la BQ#1, démontrant ainsi le couplage radiatif longue distance entre les deux BQs. Il serait alors possible de contrôler ce couplage avec  $\Theta_3$  et  $\tau_{23}$ . Cet protocole serait un premier pas vers la réalisation d'une porte logique entre deux BQs.

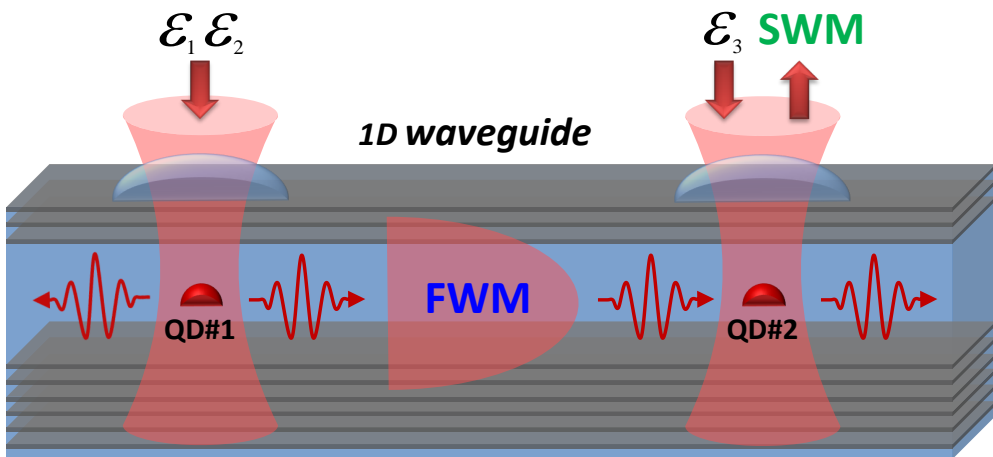


FIGURE 5.10 – Couplage radiatif entre deux BQs séparées spatialement dans un guide d'onde photonique.

# Conclusion

L'ordinateur quantique est devenu une des grandes problématiques du XXI<sup>e</sup> siècle. Les sociétés les plus influentes au monde s'intéressent de près à ce sujet. Récemment, la société canadienne D-Wave a conçu un ordinateur contenant 512 qubits réalisés à partir de circuits supraconducteurs. Même si la communauté scientifique reste sceptique, à l'image du professeur Greg Kuperberg de l'Université de Californie, "*D-Wave's technology has been an enigma, in a negative sense*"<sup>1</sup>, cela n'a pas empêché des sociétés comme Google et la NASA de s'accaparer cet ordinateur "quantique" ou non.

Les recherches effectuées durant ma thèse sont très loin de ces enjeux économiques. L'aspect fondamental reste le critère prépondérant qui a motivé les travaux présentés dans ce manuscrit. La technologie des BQs semiconductrices, bien que moins avancée que celle des circuits supraconducteurs, bénéficie de nombreux avantages nous permettant de tester des phénomènes quantiques jusqu'alors inaccessibles, afin d'avancer dans notre compréhension du monde de "l'infiniment petit" gouverné par les lois de la mécanique quantique. A mon sens, l'intérêt principal des BQs par rapport aux autres qubits réside dans leur couplage très efficace avec la lumière. Mes travaux de recherche ont montré que l'utilisation de nanostructures photoniques permet d'exalter ce couplage, et de gagner plusieurs ordres de grandeurs sur le signal non-linéaire d'une BQ unique. En concevant une expérience de spectroscopie non-linéaire résolue en temps combinée à une technique d'interférométrie spectrale hétérodyne, j'ai démontré qu'il est désormais possible de mesurer le signal FWM de BQs individuelles de *faibles forces d'oscillateurs*, telles que des BQs InAs/GaAs très répandues à la fois dans la recherche et l'industrie. Ce résultat, sans précédents, représente l'aboutissement d'une longue année de développement, et constitue assurément la plus grande réussite de ma thèse.

Ce dispositif expérimental m'a permis de répondre à la problématique de ma thèse et même d'aller au-delà de mes attentes. Dans un premier temps, j'ai montré qu'il est possible de mesurer la cohérence optique de BQs fortement confinées avec un rapport signal sur bruit (SNR) spectaculaire. Pour donner un ordre de grandeur au lecteur, le dispositif permet de mesurer le temps de cohérence  $T_2$  et de population  $T_1$  d'une BQ unique en seulement quelques minutes. Il est ainsi possible d'identifier rapidement des BQs limitées (ou non) radiativement, et ce même en présence d'élargissement inhomogène. De plus, la stabilité mécanique et l'automatisation du dispositif expérimental a permis de réaliser des mesures très longues, parfois sur plusieurs jours, pour atteindre un SNR sans précédents, de plus de huit ordres de grandeurs. Ce niveau de signal est nécessaire pour accéder aux mécanismes de déphasage pur d'une BQ unique responsables de l'élargissement homogène des raies excitoniques, ainsi qu'aux dynamiques des phonons acoustiques comme la formation du polaron et son évolution sur plusieurs picosecondes. D'un point de vue fondamental, ces

---

1. Journal *Wired*, 22.02.2012.

résultats représentent une avancée dans notre compréhension des processus de déphasage responsables de la décohérence d'une BQ unique.

La connexion de plusieurs qubits est indispensable dans la réalisation d'un processeur quantique performant. Comprendre les mécanismes de couplage cohérent entre les différents états excitoniques d'une ou de plusieurs BQs est donc primordial. Pour répondre à cette problématique, j'ai étudié les dynamiques cohérentes de complexes excitoniques de BQs individuelles. J'ai montré que l'énergie de liaison du biexciton et la structure fine de l'exciton sont responsables des battements quantiques que l'on observe dans le signal FWM de l'exciton et du biexciton neutre. Une analyse bidimensionnelle a permis de confirmer l'origine de ce couplage et d'identifier d'autres couplages cohérents entre les différents états chargés d'une BQ à fluctuation de charge. Contrôler électriquement l'état de charge des BQs permettrait de contrôler directement les connexions entre ces différents états, et serait un premier pas vers la réalisation d'un processeur quantique à base de BQs.

Mais imaginons maintenant, un dispositif permettant de contrôler optiquement à la fois la décohérence et les couplages cohérents de plusieurs transitions excitoniques. Est-ce réalisable ou totalement inconcevable ? Nous avons présenté dans le chapitre 5, un protocole innovant permettant de contrôler la polarisation d'un exciton avec un laser de contrôle, en convertissant (ou non) la polarisation FWM vers la polarisation SWM, en ajustant uniquement la puissance et le temps d'arrivée de l'impulsion de contrôle qui agit comme un interrupteur "on/off" sur le signal FWM de l'émetteur. Ce protocole, pour l'instant relativement simple (3 faisceaux), est à mon sens une avancée scientifique vers *le contrôle optique de la réponse cohérente d'un émetteur unique*. En appliquant ce protocole sur une paire de BQs séparées, il serait alors possible de contrôler le *couplage radiatif longue distance* entre ces deux BQs.

# Perspectives

## Les trompettes photoniques

### Le guidage de la lumière

Dans ce manuscrit, nous avons montré que l'utilisation d'une microcavité de faible  $Q$  augmente considérablement le couplage non-linéaire d'une BQ avec la lumière et permet d'extraire efficacement le signal FWM/SWM, donnant ainsi accès à de nombreuses dynamiques cohérentes sans pour autant changer les propriétés optiques de la BQ. Au cours de ma thèse, je me suis également intéressé à d'autres types de nanostructures semiconductrices dont je n'ai pas présenté les résultats.

Parmi elles, les antennes diélectriques en GaAs (cf figure 5.11 (a)) ont donné des résultats très prometteurs. La structure en forme de *trompette* permet d'augmenter le champ ressenti par les BQs en confinant le champ d'excitation jusqu'au pied du cône où sont localisées les BQs (diamètre  $0.3 \mu\text{m}$ ). Cette géométrie innovante n'emploie pas de cavité et garantit un facteur  $\beta$  élevé, de manière à coupler efficacement les BQs au mode guidé sur une large gamme spectrale allant de 50 à 100 nm [107]. Par ailleurs, le déconfinement adiabatique de la lumière émise par les BQs permet de réduire drastiquement les effets de diffraction à l'interface GaAs/air. Le cône de lumière émis par la trompette photonique est de fait très proche de l'ouverture numérique d'un objectif de microscope ( $NA \approx 0.75$ ), ce qui permet de collecter la quasi-totalité des photons émis par les BQs [108].

La réduction de la puissance incidente et l'augmentation de l'extraction des photons sont deux critères déterminants lors d'une expérience FWM. En combinant ses deux avantages, les trompettes photoniques permettent de gagner environ trois ordres de grandeurs par rapport à une BQ dans un massif en terme de SNR, donnant ainsi accès à la réponse cohérente de BQs individuelles.

La figure 5.11 (b) montre un exemple de spectre de photoluminescence (haut) de BQs InAs confinées dans une trompette photonique. Le nombre de coups par seconde atteste de l'efficacité de collection de ces structures. Le spectre FWM correspondant (bas), obtenu pour une puissance de pompe  $P_1 = 0.1 \mu\text{W}$  ( $\Theta_1 = \pi/5$ ), atteste quant à lui de l'efficacité de couplage des BQs au mode guidé. Les aires d'impulsions de la pompe et de la sonde ont été déterminées en mesurant les oscillations de Rabi illustrées sur la figure 5.11 (c). Ce niveau de signal, comparable à celui atteint avec les microcavités, nous a permis d'extraire les dynamiques de cohérences et de populations d'un système exciton-biexciton (GX-XB) via une mesure à trois faisceaux du signal FWM, de contrôler la réponse cohérente de ce système via la conversion FWM/SWM, et de révéler le couplage cohérent entre deux BQs confinées dans la même trompette via des mesures de spectroscopie FWM bidimensionnelles (2D-FWM). Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [109] que l'on peut trouver en annexe 5.5.

## Perspectives et applications

Ces nouvelles structures très prometteuses ouvrent le champ à de nombreuses perspectives. Le caractère large bande des trompettes photoniques rend possible la spectroscopie FWM des états chargés, afin de déterminer en détail les différents niveaux d'énergie d'une BQ, leurs déphasages respectifs, ainsi que les couplages cohérents entre ces niveaux. Cette grande gamme spectrale ouvre également la voie à la spectroscopie FWM multi-couleurs (pompe et sonde à des longueurs d'ondes différentes), pour explorer des phénomènes physiques non-résonants avec la pompe, comme par exemple la dynamique du polaron optique [110, 111].

L'autre intérêt des trompettes photoniques est de pouvoir accorder facilement la fréquence d'émission des BQs en appliquant une contrainte de déformation [112]. Cette contrainte peut être statique en utilisant un champ électrique ou une pointe micrométrique, afin de mettre en résonance deux BQs séparées pour démontrer couplage le radiatif longue distance [106].

Enfin, il a récemment été démontré que ces structures peuvent être couplées à des fibres optiques monomodes [113, 114]. Cette découverte ouvre la voie à de nombreuses applications comme la réalisation d'un dispositif robuste de sources de photons uniques pour le domaine de l'information quantique, la réalisation d'une source déterministe de plasmons quantiques, ou encore la réalisation d'un détecteur de champ électrique ultrasensible pour le domaine de la microscopie à effet de champ.

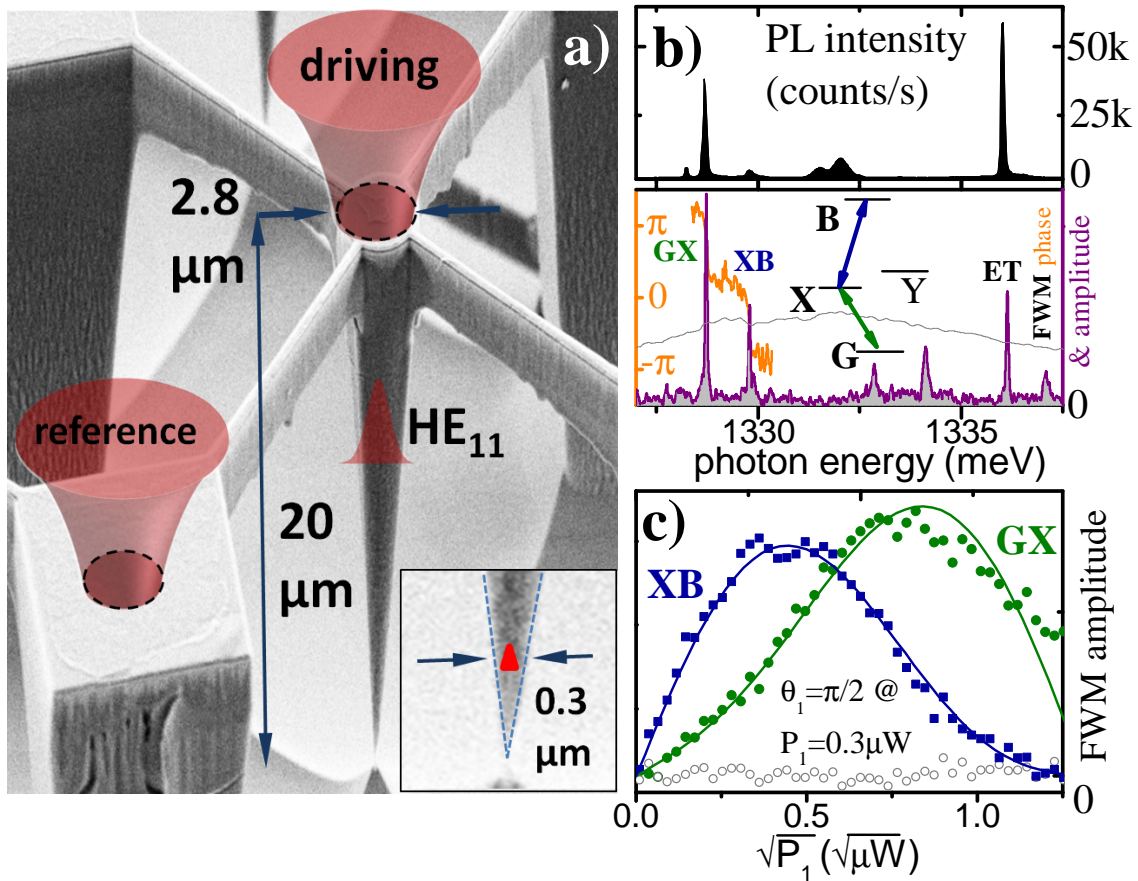


FIGURE 5.11 – Réponse FWM d'une BQ InAs confinée dans une trompette photonique. (a) Image SEM d'une trompette photonique suspendue (J. Claudon, CEA-INAC). Les BQs localisées dans le pied de la trompette (cf encadré) sont efficacement couplées aux lasers d'excitation (cône rouge) via le mode fondamental HE<sub>11</sub>. (b) Haut : spectre de photoluminescence pour une excitation non-résonante à 1.4 eV avec des impulsions de 0.3 ps et un taux de répétition de 76 MHz. La puissance laser incidente de 0.2 μW correspond à un flux moyen de 0.5 photon/ns au niveau des BQs. Bas : Amplitude FWM (violet) et phase (orange) mesurée sur la même trompette pour  $(\Theta_1, \Theta_2) = (\pi/5, 2\pi/5)$  et  $\tau_{12} = 10$  ps. Le spectre d'excitation est illustré par la ligne grise. (c) Oscillations de Rabi du signal FWM en fonction de l'aire d'impulsion  $\Theta_1 \propto \sqrt{P_1}$  pour la transition GX (cercles verts) et XB (carrés bleus).  $\Theta_2 = 0.82 \pi$  et  $\tau_{12} = 5$  ps. Traits : courbes de prédictions théoriques (cf eq A.17 ref [75]).





# Liste de publications et conférences

## Liste de publications

1. F. Frasn, **Q. Mermillod**, G. Nognes, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Multi-wave coherent control of a solid state single emitter,” *Nature Photonics*, Feb. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2016.2>
2. **Q. Mermillod**, D. Wigger, V. Delmonte, D.E. Reiter, C. Scheider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, T. Kuhn, G. Nognes, and J. Kasprzak, “Dynamics of excitons in individual InAs quantum dots revealed in four-wave mixing spectroscopy,” *Optica*, vol. 3, no. 4, pp. 377-384, Apr. 2016. [Online]. Available : <http://www.osapublishing.org/optica/abstract.cfm?URI=optica-3-4-377>
3. **Q. Mermillod**, T. Jakubczyk, V. Delmonte, A. Delga, E. Peinke, J-M. Gérard, J. Claudon, and J. Kasprzak, “Harvesting, coupling and control of single exciton coherences enabled by photonic trumpets,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 116, pp. 163903+, Apr. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.116.163903>
4. T. Jakubczyk, V. Delmonte, Fischbach, D. Wigger, D.E. Reiter, **Q. Mermillod**, P. Schnauber, A. Kaganskiy, J.-H. Schulze, A. Strittmatter, S. Rodt, W. Langbein, T. Kuhn, S. Reitzenstein, and J. Kasprzak, “Impact of phonons on dephasing of individual excitons in deterministic quantum dot microlenses,” *Nano Lett.* [In review]

## Présentations en conférences

1. **Q. Mermillod**, and J. Kasprzak, “Development of spatio-temporal pulse shaping for coherent control of individual nanoemitters,” OPON 13, Bayreuth, Germany, 2013. [Poster]
2. **Q. Mermillod**, F. Frasn, G. Nognes, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Dephasing mechanisms in a single InAs quantum dot,” PLMCN 14, Montpellier, France, 2014. [Oral]
3. **Q. Mermillod**, F. Frasn, G. Nognes, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Coherence dynamics and control of a single emitter via cavity-enhanced non-linear spectroscopy,” JBQ 15, Grenoble, France, 2015. [Poster]

4. **Q. Mermillod**, F. Fras, G. Nogues, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Coherence dynamics and control of a single emitter via cavity-enhanced non-linear spectroscopy,” FOPS 15, Breckenridge, USA, 2015. [Poster]
  
5. **Q. Mermillod**, F. Fras, G. Nogues, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Coherence dynamics and control of a single emitter via cavity-enhanced non-linear spectroscopy,” Dautreppe 15, Grenoble, France, 2015. [Poster]

## Annexe

### *Harvesting, coupling and control of single exciton coherences enabled by photonic trumpets*

**Q. Mermillod**, T. Jakubczyk, V. Delmonte, A. Delga, E. Peinke, J-M. Gérard, J. Claudon, and J. Kasprzak, “Harvesting, coupling and control of single exciton coherences enabled by photonic trumpets,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 116, pp. 163903+, Apr. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.116.163903>

# Harvesting, coupling and control of single exciton coherences enabled by photonic trumpets

Q. Mermillod,<sup>1,2,\*</sup> T. Jakubczyk,<sup>1,2</sup> V. Delmonte,<sup>1,2</sup> A. Delga,<sup>1,3</sup>  
E. Peinke,<sup>1,3</sup> J.-M. Gérard,<sup>1,3</sup> J. Claudon,<sup>1,3</sup> and J. Kasprzak<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>*Univ. Grenoble Alpes, F-38000 Grenoble, France*

<sup>2</sup>*CNRS, Institut Néel, "Nanophysique et semiconducteurs" group, F-38000 Grenoble, France*

<sup>3</sup>*CEA, INAC-PHELIQS, "Nanophysique et semiconducteurs" group, F-38000 Grenoble, France*

We retrieve coherent nonlinear responses from individual excitons strongly confined in InAs quantum dots (QDs). By embedding them in one-dimensional dielectric antennas, called photonic trumpets, we improve the detection sensitivity of such responses by up to four orders of magnitude with respect to QDs in bulk media. We perform a three-beam four-wave mixing (FWM) microspectroscopy, to investigate coherence and population evolution within an exciton-biexciton system. We also retrieve its six-wave mixing (SWM) and use it to coherently control the FWM transient, by implementing FWM/SWM switching. By employing two-dimensional FWM spectroscopy, we reveal and ascertain coherent coupling between different QDs embedded in a photonic trumpet. Our results strikingly show how a basic - albeit probably designed - photonic waveguide enables a broadband efficient harvesting, manipulation and coupling of intrinsically weak coherent responses from individual emitters. Our results pave the way towards a long-range coherent control in solid state quantum networks.

Fascinating frontiers of solid-state quantum optics<sup>1</sup> and nano-photonics<sup>2</sup> are being explored using individual excitons in semiconductor quantum dots (QDs)<sup>3,4</sup>. These few-level mesoscopic systems can serve as sources of non-classical states of light<sup>5</sup>. The robust coupling with the latter enables coherent control of an exciton on a sub-ps timescale<sup>6-8</sup> and inter-exciton coupling<sup>9,10</sup> in nanostructures, which is a prerequisite for implementing non-local quantum gates. Via coupling QD excitons with solid-state spins<sup>11</sup>, one can combine fast optical control with a long-lived coherence. Testing the performance of excitons for optical interfacing of solid state quantum bits and employing them in photonic networks requires retrieving, assessing and manipulating their coherent responses.

In this context, coherent non-linear spectroscopy enables all-optical coherent manipulation and read-out of single emitters<sup>8</sup>, in particular by investigating four-wave mixing (FWM). As depicted in Fig. 2, such polarization is driven by three, resonant, short laser pulses with electric field amplitudes  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  and  $\mathcal{E}_3$ . In the lowest order, FWM is proportional to  $\mu^4 \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3$ , with  $\mu$  being the optical dipole moment of the emitter. Due to the steep dependence on  $\mu$ , first investigations of FWM on single emitters have been limited to giant oscillator strength excitons, formed for example by interface fluctuations of a thin quantum well<sup>9,12</sup>. A successful strategy to improve the FWM signal-to-background ratio relies on photonic structures that locally enhance the driving fields experienced by the QD, while simultaneously improving the collection efficiency. In particular, semiconductor microcavities have shown appealing prospects<sup>8,10,13</sup>, albeit at the cost of an operation bandwidth limited to the cavity resonance.

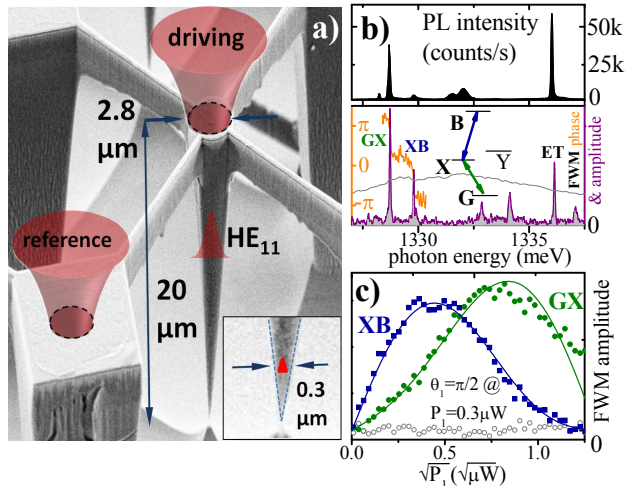
We show here that nanowire antennas, initially introduced to realize bright sources of quantum light<sup>14,15</sup>, dramatically enhance the non-linear response of individual QDs over a broad spectral range. This enhancement enables a comprehensive investigation of the coherence properties of excitonic complexes strongly confined in self-assembled InAs QDs. While

such emitters constitute one of the leading systems for solid-state quantum optics<sup>2,5</sup>, their moderate oscillator strength has hindered investigations of coherence at the single QD level. Furthermore, we show that FWM can reveal an off-resonant coupling via underlying Coulomb interaction between two distinct QDs embedded in the antenna. Finally, we also recover six-wave mixing (SWM) of an exciton-biexciton system, and use it to coherently control the FWM transient.

The antenna, shown in Fig. 1 a, is made of GaAs and has the shape of a suspended inverted cone — or photonic trumpet<sup>15</sup> (PT) — anchored to square pillars, to improve its mechanical stability. In the following experiments, the driving pulses  $\mathcal{E}_{1,2,3}$ , are focused on the circular top facet while the reference beam  $\mathcal{E}_r$ , employed in the interferometric detection, is focused on the auxiliary pillar. Thanks to a proper anti-reflection coating and to the nearly Gaussian profile of the fundamental guided mode ( $\text{HE}_{11}$ )<sup>16</sup>, Gaussian driving beams with adapted waists are transmitted to the tapered section with negligible losses. On the waveguide axis, the electrical field amplitude scales as  $\sqrt{n_g/S_{\text{eff}}}$ , with  $n_g$  the group index and  $S_{\text{eff}}$  the effective mode surface<sup>17</sup>. Field enhancement reaches a maximum at the QDs position, when the waveguide diameter is reduced down to  $0.3 \mu\text{m}$ , because of the optimal lateral confinement of the mode, assisted by a slow-light effect<sup>17</sup>. Compared to a QD embedded in bulk GaAs, a factor of  $\sim 100$  is gained on the global amplitude  $\mathcal{E}_1 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_3$ , driving the FWM. Simultaneously, the collection efficiency of the generated FWM increases from around 1.2% up to 45%. As a consequence, the FWM is retrieved with signal-to-background ratio improved by a factor of  $\sim 4 \times 10^3$ . Moreover, these non-resonant photonic structures naturally provide a large operation bandwidth ( $> 100 \text{ nm}$ )<sup>18</sup>.

To retrieve wave-mixing signals of individual strongly-confined InAs QDs, we have implemented an extended version<sup>8</sup> of the heterodyne spectral interferometry<sup>12</sup>. Employing acousto-optic modulation, the driving pulses  $\mathcal{E}_{1,2,3}$  are frequency up-shifted by radio-frequencies  $\Omega_{1,2,3}$  introducing controlled phase-

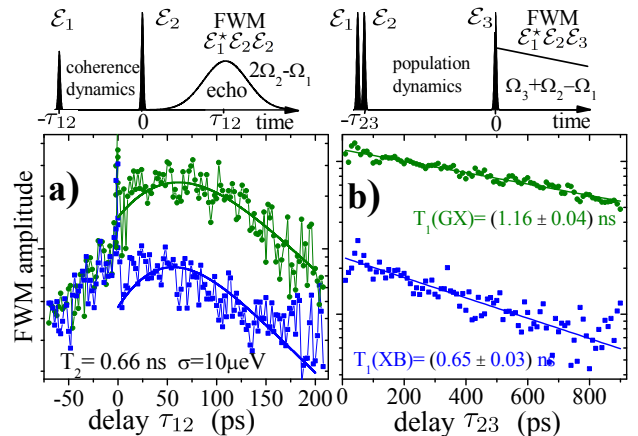
drifts in their respective trains. After having acquired delays  $\tau_{12}$  and  $\tau_{23}$ ,  $\mathcal{E}_{1,2,3}$  are recombined into a common spatial mode and are focused on the sample with the microscope objective. The searched response is discriminated in the reflectance by the phase-sensitive optical heterodyning, attaining a selectivity in field (intensity) of  $10^6$  ( $10^{12}$ ). The experiment is described in Ref. [8].



**FIG. 1. Four-wave mixing response of an exciton-biexciton system confined in an InAs QD embedded in a photonic trumpet.** a) SEM image of a cone shaped GaAs-based, suspended PT, efficiently coupling the external, resonant laser pulses (depicted with the red cones) with the QDs located at the bottom tip of the trumpet, as shown by the red triangle in the inset. b) Top: Photoluminescence (PL) spectrum excited non-resonantly at 1.4 eV with 0.3 ps pulses at 76 MHz repetition rate. The used intensity of  $0.2 \mu\text{W}$  at the top facet of the PT, corresponds to an average flux at the QD position of 0.5 photons per exciton lifetime. Bottom: FWM amplitude (violet) and phase (orange) measured on the same PT: a pair of peaks at the low energy side is attributed to GX and XB, as depicted.  $\tau_{12} = 10$  ps,  $(\theta_1, \theta_2) = (\pi/5, 2\pi/5)$ . The excitation spectrum is given with a gray line. c) FWM as a function of  $\mathcal{E}_1$  pulse area  $\theta_1 \propto \sqrt{P_1}$  for  $\theta_2 = 0.82\pi$  showing Rabi oscillation at GX (green circles) and XB (blue squares),  $\tau_{12} = 5$  ps. The prediction is given by a green and blue line, respectively.

After performing spectral interferometry on the interference between  $\mathcal{E}_r$  and the reflectance of the PT heterodyned at the  $2\Omega_2 - \Omega_1$  frequency, the degenerate FWM is retrieved in amplitude and phase, as shown in Fig. 1 b. The spectrally sharp peaks, correspond to the FWM from individual excitons (measurements performed at  $T = 5.2 \pm 0.5$  K). Having verified the FWM polarization selection rules, as performed in section C in the Supplementary Material (SM), the resonances at 1328.74 meV and 1329.8 meV are unequivocally recognized as ground state-exciton (GX) and exciton-biexciton (XB) transitions, as sketched in the inset of Fig. 1 b. Note the negative biexciton renormalization energy of  $\Delta \simeq -1$  meV, indicating a small spatial extent of wavefunctions of the both complexes and thus their small  $\mu$ .

To illustrate an enhanced coupling of  $\mathcal{E}_{1,2,3}$  with the QD, we present in Fig. 1 c FWM amplitudes of the GX



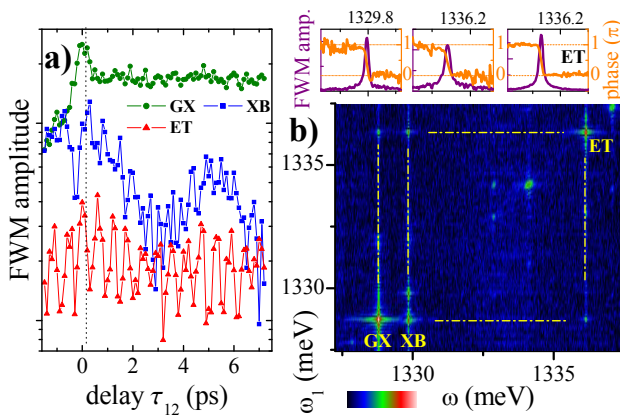
**FIG. 2. Coherence and population dynamics in the exciton-biexciton system.** Top: The pulse sequence used in the experiment and related observables. Coherence (population) dynamics is investigated via degenerate (non-degenerate) FWM, as depicted in the left (right) sketch. a) Coherence dynamics of GX and XB measured in FWM yielding  $T_2$  and  $\sigma$ . Applied pulse areas  $(\theta_1, \theta_2) = (\pi/5, 2\pi/5)$ . d) Population dynamics of X and B states measured via FWM, yielding  $T_1$ ,  $\tau_{12} = 1$  ps. Co-linear excitation/detection used in all panels.

and XB as a function of  $\mathcal{E}_1$  pulse area  $\theta_1$  (being proportional to the square-root of pulse  $\mathcal{E}_1$  intensity  $P_1$ ). The FWM of both transitions reaches its maximum, corresponding to the  $\theta_1 = \pi/2$  area, for impressively low  $\mathcal{E}_1$  intensity of around  $0.3 \mu\text{W}$ , two orders of magnitude less than in strongly-confined GaAs QDs<sup>19</sup>. Further increase of  $\theta_1$  results in Rabi flopping modeled using analytical prediction<sup>19</sup> only by adjusting XB to GX dipole moment ratio  $\mu_{XB}/\mu_{GX} = 0.9$  and displayed by solid lines in Fig. 1 c.

As depicted in Fig. 2 a, by measuring time-integrated degenerate FWM as a function of delay  $\tau_{12}$  between  $\mathcal{E}_1$  and  $\mathcal{E}_2$  one infers the QD coherence dynamics. In particular, one retrieves the dephasing time  $T_2$  and corresponding homogeneous broadening  $\gamma = \frac{2\hbar}{T_2}$  FWHM. To investigate the coherence evolution in the exciton-biexciton system, we present the FWM of GX and XB as a function of  $\tau_{12}$  from -70 to 200 ps. For  $\tau_{12} > 0$  we observe an initial rise, followed by an exponential decay. The FWM rise is due to the formation of a photon echo triggered by a spectral wandering, which acts as a source of inhomogeneous broadening  $\sigma$ <sup>19</sup>. Further research is required to ascertain its origin and assess the influence of surface properties on  $\sigma$ . Resulting photon echos created by single transitions in PTs are observed in time-resolved FWM and discussed in Fig. S1 and S2 in SM. The strength of the FWM technique to ascertain the optical coherence stems from the capability of disentangling  $\gamma$  and  $\sigma$ , even at the single transition level. To simulate the coherence evolution of such inhomogeneously broadened transitions, we implement the model presented in Ref. [19] retrieving  $\sigma = (10 \pm 4) \mu\text{eV}$  and  $T_2 = (0.66 \pm 0.05)$  ns, in agreement with measurements performed on ensembles<sup>20</sup>.

To measure population evolution via FWM, three beams are required, as depicted in Fig. 2 b.  $\mathcal{E}_1$  and

$\mathcal{E}_2$  first create X and B population oscillating at  $\Omega_2 - \Omega_1$ .  $\mathcal{E}_3$  arriving as the last one, creates a polarization proportional to this density, the FWM, which is detected at the  $\Omega_3 + \Omega_2 - \Omega_1$  frequency. Thus varying delay  $\tau_{23}$  between  $\mathcal{E}_2$  and  $\mathcal{E}_3$ , the measured FWM reflects population evolution, and yields the lifetime  $T_1$ . From the resulting exponential decays of the FWM amplitude on the GX and XB transitions we retrieve the exciton and biexciton lifetimes of  $T_1(\text{GX, XB}) = (1.16 \pm 0.04, 0.65 \pm 0.05)$  ns, with their ratio approaching theoretical limit<sup>21</sup> of 2. Finally, from the measured  $T_2$  and  $T_1$ , we retrieve the pure dephasing time for GX and XB of  $T_2^*(\text{GX, XB}) = (0.92 \pm 0.06, 1.34 \pm 0.07)$  ns. We conclude that the investigated transitions are not radiatively limited. As an origin of the pure dephasing ( $\frac{1}{T_2^*} = \frac{1}{T_2} - \frac{1}{2T_1}$ ), we propose the charge noise<sup>22,23</sup> at the proximity of the QD.



**FIG. 3. Observation of coherent coupling between a pair of QDs in the PT.** a) Delay dependence of the FWM amplitude for GX, XB (QD1) and ET (QD2),  $-1.5 < \tau_{12} < 7.2$  ps, delay-step  $\delta\tau_{12} = 0.1$  ps. Modulations with a period of 4.3 ps and 0.58 ps indicate mutual coherent couplings. b) Amplitude of the two-dimensional FWM: coherent coupling is evidenced by a pair of off-diagonal peaks, forming square features depicted with the dashed lines. Note the presence of the diagonal peak for XB induced by a non-perturbative FWM driving with  $(\theta_1, \theta_2) = (\pi/2, \pi)$ . Logarithmic scale over two orders of magnitude, given by the color bar. Top: FWM amplitude and phase of the off-diagonal peaks at (1329.8, 1336.16) meV and the diagonal ET peak.

The transfer of coherence between a pair of emitters is an essential ingredient to achieve optically controlled two-qubit operations in a solid. Below, we reveal coherent coupling<sup>9,10,24,25</sup> between a pair of QDs embedded in the investigated PT. The QD1 hosts GX and XB transitions, while the ET (recognized as a charged exciton transition) occurs in the QD2. In Fig. 3a we present coherence dynamics measured when simultaneously driving QD1 and QD2. The dynamics of XB is dominated by the exciton-biexciton beating with a period  $|2\pi\hbar/\Delta| \simeq 4.5$  ps driven by fifth-order contributions to the FWM<sup>26,27</sup>, predominant upon  $(\theta_1, \theta_2) \simeq (\pi/2, \pi)$  employed here. This beating is reduced using  $(\theta_1, \theta_2) = (\pi/5, 2\pi/5)$ , as shown in Fig. 2a. Additionally, we observe the modulation with a period 0.58 ps, particularly pronounced

on the ET transition and corresponding to the spectral separation between both QDs, hence indicating their mutual coupling.

Its definite display is provided by the two-dimensional FWM spectrum<sup>9,10</sup> shown in Fig. 3b. By Fourier-transforming the FWM along the delay  $\tau_{12}$  we obtain a map linking the first-order absorption frequency  $\omega_1$ , with the FWM one,  $\omega$ . The off-diagonal signals in such a diagram are signatures of coherent coupling, i.e. conversion of the absorbed  $\omega_1$  into different  $\omega$ , as depicted by squares. The mutual coupling within the triplet (GX, XB, ET) is thus detected. The internal coupling in QD1, i.e. between GX and XB, is expected<sup>9,19</sup>. Conversely, the transfer of coherence toward ET in QD2 is more intriguing. Owing to a large frequency detuning between ET and GX, the radiative coupling<sup>28</sup> is excluded. Coherent coupling between excitons in closely lying QDs stems from their Coulomb interaction<sup>9,24,25</sup>, inducing the biexciton shift or/and the dipole-dipole Förster coupling. To distinguish between both mechanisms, in Fig. 3b (top) we inspect the amplitude and phase of the off-diagonal terms in the 2D FWM<sup>9</sup>: the former generates a double-peak and  $2\pi$  spectral shift across the off-diagonal signal, while the latter produces a single off-diagonal peak with the  $1\pi$  phase shift. This last scenario is indeed revealed by the experimental data, indicating Förster coupling between QD1 and QD2. The spectral shift between the uncoupled and coupled states is not detected owing to the large spectral detuning of both QDs with respect to the dipole coupling strength estimated to a few hundred of  $\mu\text{eV}$ . More involved multi-dimensional spectroscopy<sup>25</sup> could provide additional insights into the microscopic mechanism of the observed coupling.

The three-beam configuration of the setup enables to control the FWM transient<sup>8</sup>. The protocol is based on converting a desired amount of the FWM field into the six-wave mixing (SWM) one, by adjusting the delay and pulse area of the control pulse. The applied pulse sequence is depicted in Fig. 4a.  $\mathcal{E}_1$  and  $\mathcal{E}_2$  drive FWM at the  $2\Omega_2 - \Omega_1$ , which is evolving during  $\tau_{23}$ .  $\mathcal{E}_3$  converts it into the SWM, propagating at the  $2\Omega_3 - 2\Omega_2 + \Omega_1$  frequency. The amount of FWM converted to SWM is governed by  $\theta_3$ . Specifically, for  $\theta_3 = \pi$  the entirety of FWM is transferred to SWM. Such control via FWM/SWM switching represents the step change with respect to past FWM experiments, as it enables to accurately design the FWM response in temporal and frequency domains, by tuning  $\tau_{23}$  and  $\theta_3$ . The SWM spectrum of the investigated exciton-biexciton system driven at  $(\theta_1, \theta_2, \theta_3) = (\pi/2, \pi, \pi)$  is shown in Fig. 4b (top). In the middle panel we present the corresponding FWM: for  $\theta_3 = 0$  and  $\tau_{12} = 3$  ps (dark blue) we recover the response as in Fig. 1b. Instead, for  $\theta_3 = \pi$  (red) the FWM of the GX transition is quenched, whereas the one of XB is enhanced. Such a FWM/SWM switching at the GX transition is retrieved in the time domain in Fig. 4c. At the arrival of  $\mathcal{E}_3$  for  $\tau_{23} = 30$  ps the FWM is virtually suppressed, while the onset of the SWM is observed. This temporal gating of the FWM is clearly observed in Fig. 4d generated by plotting FWM transients (hor-

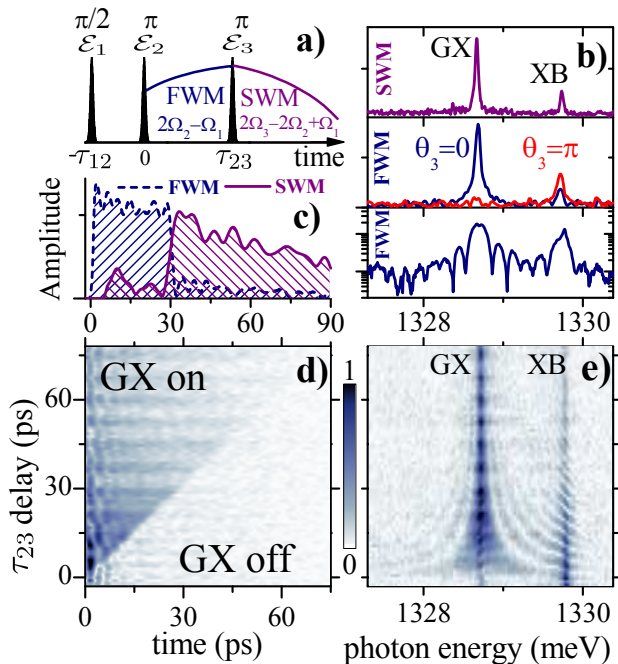


FIG. 4. **Six-wave mixing and coherent control of the exciton-biexciton system of an InAs QD in PT.** a) A sketch of the pulse sequence and their areas employed to drive the SWM and to manipulate the FWM transient via FWM/SWM conversion scheme. b) Top: SWM spectrum of GX and XB:  $(\tau_{12}, \tau_{23}) = (15, 30)$  ps,  $(\theta_1, \theta_2, \theta_3) = (\pi/2, \pi, \pi)$ . Middle: Coherent control of the GX and XB by FWM/SWM switching:  $\theta_3 = 0$  and  $\theta_3 = \pi$  correspond to blue and red spectra, respectively. Bottom: Manipulation of the FWM spectral response of the GX and XB:  $\theta_3 = \pi$ ,  $\tau_{23} = 30$  ps. c) Conversion of the FWM to SWM observed on the GX in time domain:  $\theta_3 = \pi$ ,  $\tau_{23} = 30$  ps. d) FWM as in c) for varying  $\tau_{23}$ . e) as in b) (bottom) for varying  $\tau_{23}$ . Logarithmic scale over two orders of magnitude, given by the color bar.

izontal axis) for increasing  $\tau_{23}$  (vertical axis) from -3 to 78 ps: FWM is present uniquely prior to the arrival of  $\mathcal{E}_3$ . An abrupt cut of the signal in time domain induces a particular FWM spectral line-shape<sup>8</sup> of GX and XB, with a gradual broadening of the zero phonon lines and build up of side-bands, exemplified in Fig.4 b

(bottom) for  $\tau_{23} = 30$  ps. This effect is visualized in the map shown in Fig.4 e, displaying FWM spectra when varying  $\tau_{23}$ .

We performed coherent nonlinear spectroscopy of single, strongly-confined excitons in InAs QDs embedded in PTs. Such waveguides offer a perfect interfacing of QD excitons with external excitation, enabling to harvest their multi-wave mixing responses with the sensitivity improved by up to four-orders of magnitude with respect to a QD in a bulk. Wave mixing spectroscopy was employed not only to assess the coherence of individual transitions, but also to ascertain inter-exciton couplings with 2D FWM and to manipulate coherent response via FWM/SWM switching. Note that the presented control scheme necessitates addressing individual transitions in contrast to past SWM experiments<sup>27,29,30</sup>. Prospective SWM studies on individual QDs could elucidate their non-Markovian dephasing<sup>30</sup>. Photonic nanostructures designed to enhance the light-matter interaction, like semiconductor micro-cavities or photonic crystals, operate in a narrow spectral window, defined by the width of a resonating mode. PTs overcome this limitation thanks to their wave guiding functionality over a broad spectral range exceeding 100 nm, whilst offering the field enhancement at the QD position. This unique feature opens new possibilities for coherent spectroscopy of single emitters, like performing multi-color multi-wave mixing. With such a prospective Raman-type spectroscopy on single QDs<sup>31</sup>, one could for example explore dynamics of optical polarons<sup>32,33</sup> (coupled exciton-optical phonon modes) and study propagation of acoustic phonons between off-resonant, spatially distant excitons. The broadband character of PTs also enables to perform wave-mixing spectroscopy on excited states of a QD, to determine its level structure and to retrieve related dephasings and coherent couplings. A versatility of PTs, could also be exploited to demonstrate radiative coupling<sup>28</sup> in a pair of separate excitons, by taking advantage of their accurate frequency tunability via strain<sup>34</sup>.

We acknowledge the support by the ERC Starting Grant PICSSEN, contract no. 306387. Sample fabrication was carried out in the "Plateforme Technologique Amont (PTA)" and CEA LETI MINATEC/DOPT clean rooms.

\* quentin.mermillod@neel.cnrs.fr

† jacek.kasprzak@neel.cnrs.fr

<sup>1</sup> Jahnke, F. (ed.) *Quantum optics with semiconductor nanostructures* (Woodhead Publishing, 2012).

<sup>2</sup> Lodahl, P., Mahmoodian, S. & Stobbe, S. Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures. *Rev. Mod. Phys.* **87**, 347 (2015).

<sup>3</sup> Tartakovskii, A. (ed.) *Quantum Dots: Optics, Electron Transport and Future Applications* (Cambridge University Press, 2012).

<sup>4</sup> Henneberger, F. & Benson, O. (eds.) *Semiconductor Quantum Bits* (Pan Stanford, 2008).

<sup>5</sup> Schulte, C. H. H. *et al.* Quadrature squeezed photons from a two-level system. *Nature* **525**, 222–225 (2015).

<sup>6</sup> Zrenner, A. *et al.* Coherent properties of a two-level

system based on a quantum-dot photodiode. *Nature* **418**, 612 (2002).

<sup>7</sup> Ramsay, A. J. *et al.* Phonon-induced rabi-frequency renormalization of optically driven single InGaAs/GaAs quantum dots. *Phys. Rev. Lett* **105**, 177402 (2010).

<sup>8</sup> Fras, F. *et al.* Multi-wave coherent control of a solid state single emitter. *Nat. Phot.* accepted, arXiv:1509.07690 (2015).

<sup>9</sup> Kasprzak, J., Patton, B., Savona, V. & Langbein, W. Coherent coupling between distant excitons revealed by two-dimensional nonlinear hyperspectral imaging. *Nat. Phot.* **5**, 57–63 (2011).

<sup>10</sup> Albert, F. *et al.* Microcavity controlled coupling of excitonic qubits. *Nat. Comm.* **4**, 1747 (2013).

- <sup>11</sup> Gao, W. B., Imamoglu, A., Bernien, H. & Hanson, R. Coherent manipulation, measurement and entanglement of individual solid-state spins using optical fields. *Nat. Photon.* **9**, 363 (2015).
- <sup>12</sup> Langbein, W. & Patton, B. Microscopic measurement of photon echo formation in groups of individual excitonic transitions. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 017403 (2005).
- <sup>13</sup> Kasprzak, J. *et al.* Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum-dot/microcavity system. *Nat. Mater.* **9**, 304–308 (2010).
- <sup>14</sup> Claudon, J. *et al.* A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire. *Nat. Photon.* **4**, 174 (2010).
- <sup>15</sup> Munsch, M. *et al.* Dielectric GaAs antenna ensuring an efficient broadband coupling between an InAs quantum dot and a Gaussian optical beam. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 177402 (2013).
- <sup>16</sup> Stepanov, P. *et al.* Highly directive and Gaussian far-field emission from “giant” photonic trumpets. *Appl. Phys. Lett.* **107**, 141106 (2015).
- <sup>17</sup> Bleuse, J. *et al.* Inhibition, enhancement, and control of spontaneous emission in photonic nanowires. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 103601 (2011).
- <sup>18</sup> Claudon, J., Gregersen, N., Lalanne, P. & Gérard, J.-M. Harnessing light with photonic nanowires: fundamentals and applications to quantum optics. *Chem. Phys. Chem.* **14**, 2393–2402 (2013).
- <sup>19</sup> Kasprzak, J. *et al.* Vectorial nonlinear coherent response of a strongly confined exciton-biexciton system. *New J. Phys.* **15**, 055006 (2013).
- <sup>20</sup> Borri, P. *et al.* Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots: Dependence on quantum confinement. *Phys. Rev. B* **71**, 115328 (2005).
- <sup>21</sup> Bacher, G. *et al.* Biexciton versus exciton lifetime in a single semiconductor quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4417 (1999).
- <sup>22</sup> Berthelot, A. *et al.* Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot. *Nat. Phys.* **2**, 759 (2006).
- <sup>23</sup> Kuhlmann, A. V. *et al.* Charge noise and spin noise in a semiconductor quantum device. *Nat. Phys.* **9**, 570 (2013).
- <sup>24</sup> Danckwerts, J., Ahn, K. J., Förstner, J. & Knorr, A. Theory of ultrafast nonlinear optics of Coulomb-coupled semiconductor quantum dots: Rabi oscillations and pump-probe spectra. *Phys. Rev. B* **73**, 165318 (2006).
- <sup>25</sup> Specht, J. F., Knorr, A. & Richter, M. Two-dimensional spectroscopy: An approach to distinguish Förster and Dexter transfer processes in coupled nanostructures. *Phys. Rev. B* **91**, 155313 (2015).
- <sup>26</sup> Langbein, W., Meier, T., Koch, S. & Hvam, J. Spectral signatures of  $\chi^{(5)}$  processes in four-wave mixing of homogeneously broadened excitons. *J. Opt. Soc. Am. B* **18**, 1318 (2001).
- <sup>27</sup> Tahara, H., Ogawa, Y., Minami, F., Akahane, K. & Sasaki, M. Generation of undamped exciton-biexciton beats in InAs quantum dots using six-wave mixing. *Phys. Rev. B* **89**, 195306 (2014).
- <sup>28</sup> Minkov, M. & Savona, V. Radiative coupling of quantum dots in photonic crystal structures. *Phys. Rev. B* **87**, 125306 (2013).
- <sup>29</sup> Voss, T. *et al.* Biexcitonic effects in the coherent control of the excitonic polarization detected in six-wave-mixing signals. *Phys. Rev. B* **66**, 155301 (2002).
- <sup>30</sup> Tahara, H., Ogawa, Y., Minami, F., Akahane, K. & Sasaki, M. Long-time correlation in non-markovian dephasing of an exciton-phonon system in InAs quantum dot. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 147404 (2014).
- <sup>31</sup> Gammon, D. *et al.* Nuclear spectroscopy in single quantum dots: Nanoscopic Raman scattering and nuclear magnetic resonance. *Science* **277**, 85 (1997).
- <sup>32</sup> Hameau, S., Guldner, Y., Verzele, O., Ferreira, R. & Bastard, G. Strong electron-phonon coupling regime in quantum dots: Evidence for everlasting resonant polarons. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4152 (1999).
- <sup>33</sup> Zibik, E. A. *et al.* Intraband relaxation via polaron decay in InAs self-assembled quantum dots. *Phys. Rev. B* **70**, 161305(R) (2004).
- <sup>34</sup> Yeo, I. *et al.* Strain-mediated coupling in a quantum dot-mechanical oscillator hybrid system. *Nat. Nanotech.* **9**, 106–110 (2014).



**SUPPLEMENTARY MATERIAL**  
**Harvesting, coupling and control of single exciton coherences**  
**enabled by photonic trumpets**

Q. Mermillod,<sup>1,2,\*</sup> T. Jakubczyk,<sup>1,2</sup> V. Delmonte,<sup>1,2</sup> A. Delga,<sup>1,3</sup>  
E. Peinke,<sup>1,3</sup> J-M. Gérard,<sup>1,3</sup> J. Claudon,<sup>1,3</sup> and J. Kasprzak<sup>1,2,†</sup>

<sup>1</sup>*Univ. Grenoble Alpes, F-38000 Grenoble, France*

<sup>2</sup>*CNRS, Institut Néel, "Nanophysique et semiconducteurs" group, F-38000 Grenoble, France*

<sup>3</sup>*CEA, INAC-PHELIQS, "Nanophysique et semiconducteurs" group, F-38000 Grenoble, France*

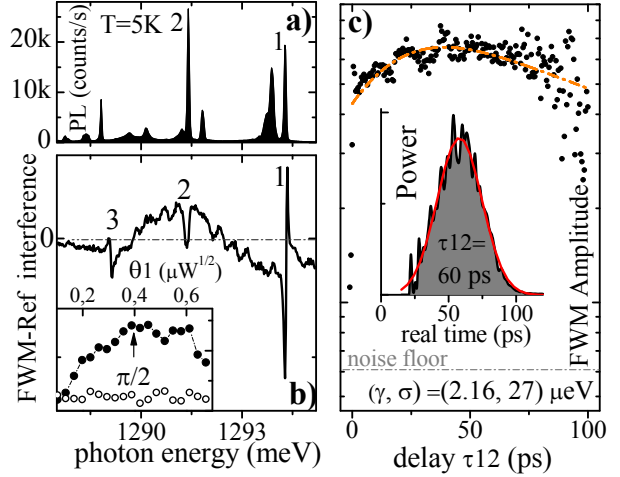
**A. Sample fabrication.**

The suspended PTs shown in Fig. 1 b, specifically developed for this work, offer improved mechanical stability and robustness with respect to stand-alone ones<sup>15</sup>. They were fabricated from a planar GaAs sample containing a single layer of InAs QDs grown by molecular beam epitaxy. After deposition of a hard mask by e-beam lithography, metal deposition and lift-off, the structures are defined by deep plasma etching with a controlled under etching angle of 4°. The PTs investigated in the main manuscript (Sample A) feature a length of 20  $\mu\text{m}$  and a top diameter of 2.8  $\mu\text{m}$ . Around the QDs, the waveguide section features a 0.3  $\mu\text{m}$  diameter. Auxiliary pillars (used to reflect the reference field,  $\mathcal{E}_r$ ) and PTs are respectively shifted by 15  $\mu\text{m}$ , and are organized in pattern of five-by-five PTs, with a gradually varying PT top-diameters from 2  $\mu\text{m}$  to 4  $\mu\text{m}$ . Fig. 1 b shows a photo-luminescence spectrum, acquired under pulsed, non-resonant excitation. QD saturation is achieved for a pump intensity as low as 0.4  $\mu\text{W}$ . The transitions then feature a bright emission, with spectrally-integrated count rate of 400 kHz.

**B. Coherence and FWM dynamics of InAs QDs in PTs: comprehensive analysis of dephasing mechanisms. Supplementary examples.**

PTs enable to retrieve FWM from single InAs QDs within a broad spectral range from 915 nm to 960 nm. To exemplify this broad-band operation, in Fig. S1 we present results obtained on the sample (Sample B) containing QDs emitting at 960 nm, with respect to the Sample A emitting around 930 nm. In the Sample B, PTs have a length of 30  $\mu\text{m}$ , a top diameter of 4.5  $\mu\text{m}$  and a taper angle of  $\sim 8^\circ$ , and thus are bigger than in the Sample A.

In Fig. S1 a we show a photoluminescence spectrum, non-resonantly excited at 1.4 eV with intensity of 30 nW, an order of magnitude below the QD saturation. A spectral interference at the FWM



Supplementary Figure S1. **PL and FWM spectroscopy of InAs QDs emitting at 960 nm embedded in a photonic trumpet. Sample B.**

heterodyne frequency  $2\Omega_2 - \Omega_1$ , obtained on the same PT is shown in Fig. S1 b. Three, spectrally sharp features, correspond to the FWM from three individual transitions in InAs QDs. As already observed in Fig. 1 b, the PL and FWM spectra are not the same. Transitions marked as “1” and “2” are observed in both experiments. Conversely, “3”, detected in the FWM, does not have its counterpart in the PL. FWM amplitude of the transition “1” as a function of  $\mathcal{E}_1$  pulse area  $\theta_1$  is shown in the inset. FWM reaches its maximum, corresponding to the  $\theta_1 = \pi/2$  area, for  $\mathcal{E}_1$  intensity of only 0.2  $\mu\text{W}$ , indicating an excellent coupling between the  $\mathcal{E}_{1,2,3}$  driving fields and the exciton transition. Further increase of  $\theta_1$  results in the Rabi flopping and decrease of the FWM amplitude.

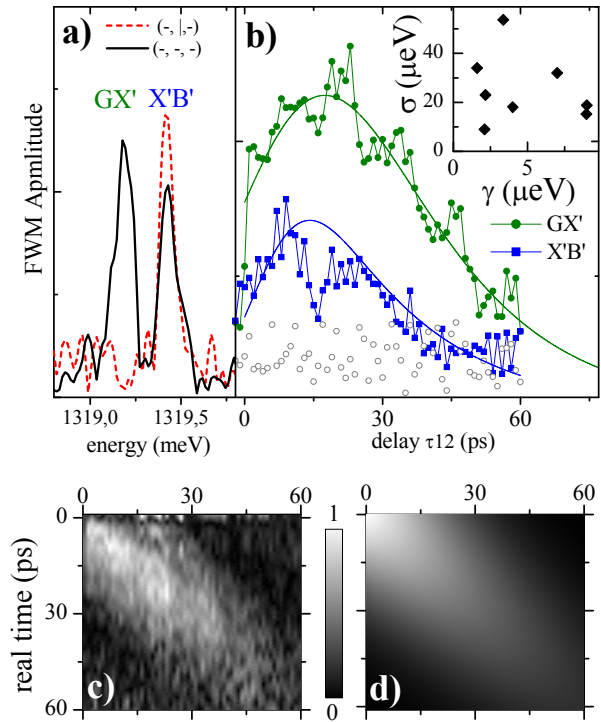
In order to infer dephasing mechanisms, we have first examined the time-resolved FWM for fixed  $\tau_{12} = 60$  ps, displayed in Fig. S1 c. The response clearly reveals a Gaussian photon echo (the red trace corresponds to a Gaussian fit), with the temporal FWHM spread of  $t_{\text{inh}} = 56$  ps for the FWM amplitude. Such an echo in the FWM transient is a fingerprint of the spectral inhomogeneous broadening  $\sigma$ . Applying the model presented in Ref. [19], it is evaluated as  $\sigma = \hbar\sqrt{8\ln 2}/t_{\text{inh}} =$

27  $\mu\text{eV}$ . On a single exciton level,  $\sigma$  is attributed to the spectral wandering, occurring within the integration time<sup>19</sup>. By varying the latter from 1 ms to 1 s we observe virtually the same echo behavior. We thus conclude that the spectral fluctuations of this transition occur at the sub-ms timescale. Spectral positions of the transition “1” fluctuate with a characteristic spread of  $\sigma$  over the measurement. Despite their temporal separation, they all interfere with the reference field  $\mathcal{E}_r$  and give rise to the involved spectral shape of the resulting time-averaged interferogram. After applying Fourier-transform in the spectral interferometry algorithm, this yields a Gaussian response in time centered at  $t = \tau_{12}$ , i. e. photon echo. We note that excitons in all investigated PTs (statistics of  $\gamma$  and  $\sigma$  is shown in the inset of Fig. S2 b) displayed a measurable echo in their coherence dynamics, yielding  $\sigma$  up to 50  $\mu\text{eV}$ .

To assess the coherence dynamics, we have measured  $\tau_{12}$  delay dependence of the FWM amplitude, displayed in Fig. S1 c. Suppression of the FWM for negative delays indicates lack of two-particle, biexcitonic state. We thus attribute the investigated transition “1” to a charged exciton. In the FWM delay dynamics, we observe initial rise, which is due to the echo formation, followed by an exponential decay. To simulate coherence evolution (depicted with the orange dashed line, also see Fig. 2 a and Fig. S2 b) of such inhomogeneously broadened transition, we implement the model presented in Ref. [19]. Bearing in mind previously determined  $\sigma$ , we retrieve the dephasing time  $T_2 = (610 \pm 20)$  ps as the only fitting parameter, corresponding to the homogeneous broadening of  $\gamma = (2.16 \pm 0.07)\mu\text{eV}$ .

In Fig. S2 a we present FWM spectra in  $(\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_r) = (-, -, -)$  (black solid) and  $(-, |, -)$  (red dashed) configuration on a PT having a top-diameter of 2.9  $\mu\text{m}$ . Using the FWM polarization selection rules (see Fig. 1 d), a pair of transitions (GX', X'B') is identified as an exciton-biexciton system, with a renormalization energy of  $\Delta' = -0.24$  meV. The retrieved coherence dynamics is shown in Fig. S2 b, yielding in this case,  $(\gamma_{GX'}, \sigma_{GX'}) = (7, 33)\mu\text{eV}$  and  $(\gamma_{X'B'}, \sigma_{X'B'}) = (7, 58)\mu\text{eV}$ . Clearly, larger  $\sigma$  deteriorates the coherence of both transitions, resulting in larger  $\gamma$  with respect to the example investigated in the main manuscript (Fig. 2). Note, a larger inhomogeneous broadening of X'B' with respect to the GX', indicating anti-correlation in spectral wandering of the exciton and the biexciton level. In the coherence dynamics we also identify exciton-biexciton beating with a period of  $|2\pi\hbar/\Delta'| = 17$  ps. The noise floor is given by open circles.

The time-resolved FWM amplitude of the GX' as a function of  $\tau_{12}$  is shown in Fig. S2 c. Due to a large  $\sigma$  (and thus sufficiently narrow width of the echo in time) such a map explicitly shows forma-

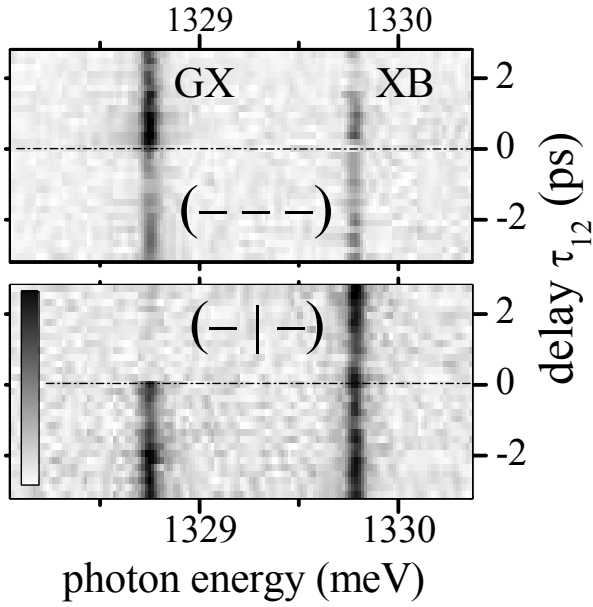


Supplementary Figure S2. **Coherence and FWM dynamics measured on an exciton-biexciton system showing an increased inhomogeneous broadening  $\sigma$  with respect to Fig. 2 and Fig. S1.**

tion of the photon echo<sup>19</sup>. Namely, we see the shift of the FWM maximum in real time  $t$  according to  $\tau_{12}$ , forming a Gaussian centered along the diagonal line  $\tau_{12} = t$ , as reproduced by the simulation shown in Fig. S2 d.

### C. Identification of the exciton-biexciton system via FWM selection rules

The resonances discussed in the main manuscript at 1328.74 meV and 1329.8 meV are recognized as ground state-exciton (GX) and exciton-biexciton (XB) transitions. We apply the FWM polarization and delay selection rules presented in Ref. [19]. In Fig. S3, we show FWM amplitude of GX and XB, as a function of  $\tau_{12}$ , around zero delay for co- and cross-linearly polarized  $\mathcal{E}_1$  and  $\mathcal{E}_2$ , for  $(\theta_1, \theta_2) = (\pi/5, 2\pi/5)$ . For negative delays, the FWM is the same for both polarization configurations:  $\mathcal{E}_2$  arrives first and induces a two-photon coherence (TPC) between G and B.  $\mathcal{E}_1$  converts TPC into the FWM released with equal amplitudes on GX and XB. Conversely, for positive delays the FWM can be generated in two manners. For co-linearly polarized  $\mathcal{E}_1$  and  $\mathcal{E}_2$  the FWM is created via density grating, with the amplitude twice larger at GX than at XB (in the  $\chi^3$ , perturbative regime). Instead, for cross-polarized excitation, the signal is created



via Raman coherence between GX and GY, such that the signal is released uniquely at XB. Finally, we note that we also measured the fine-structure beating with a period of 50 ps, yielding the splitting between GX and GY of  $\delta = 83 \mu\text{eV}$  (not shown).

Supplementary Figure S3. **Identification of GX and XB as a ground state-exciton and exciton-biexciton transition in a single InAs QD.** Delay dependence of the FWM for  $-3.2 \text{ ps} < \tau_{12} < 2.8 \text{ ps}$ , for co-linearly polarized  $\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2$  and the reference  $(-, -, -)$  (top) and for cross-polarized  $\mathcal{E}_2$ ;  $(-, |, -)$  (bottom). Detection along  $(-)$  direction.

---

\* [quentin.mermillod@neel.cnrs.fr](mailto:quentin.mermillod@neel.cnrs.fr)

† [jacek.kasprzak@neel.cnrs.fr](mailto:jacek.kasprzak@neel.cnrs.fr)



# Liste des symboles et abréviations

$\alpha_F$	Constante de Fröhlich
$\alpha_i$	Angle de polarisation de l'excitation
$\beta$	Efficacité de collection de l'émission spontanée
$\chi$	Susceptibilité électrique
$\Delta t$	Largeur temporelle des impulsions
$\Delta t_s$	Fenêtre temporelle du spectromètre
$\Delta$	Désaccord de fréquence
$\delta$	Énergie de structure fine de l'exciton
$\delta(t)$	Distribution de Dirac
$\Delta\omega$	Largeur spectrale des impulsions
$\Delta_b$	Énergie de liaison du biexciton
$\epsilon_0$	Permittivité diélectrique du vide ( $8.85 \times 10^{-12} \text{F} \cdot \text{m}^{-1}$ )
$\epsilon_r$	Permittivité diélectrique
$\Gamma$	Taux d'émission spontanée
$\gamma_1$	Taux de relaxation des populations
$\Gamma_2$	Taux de déphasage pur pendant l'excitation
$\gamma_2$	Taux de relaxation des cohérences
$\gamma_2^*$	Taux de déphasage pur
$\gamma_p$	Pertes de la cavité
$\hbar$	$h/2\pi = 1.054571 \times 10^{-34} \text{J} \cdot \text{s} = 658 \text{ } \mu\text{eV} \cdot \text{ps}$
$\Lambda$	Longueur d'onde du son dans un AOM
$\lambda$	Longueur d'onde ( $c/\nu$ )
$\lambda_{DB}$	Longueur d'onde de De Broglie
$\mu$	Moment dipolaire électrique
$\mu\text{PL}$	Micro-photoluminescence
$\mu^*$	Masse réduite de l'exciton
$\nu$	Fréquence ( $1/T$ )

$\omega$	Fréquence ( $2\pi\nu$ )
$\omega_0$	Fréquence optique du laser ou de la transition ( $\approx 330$ THz)
$\Omega_i$	Radio-fréquences de modulation ( $\approx 80$ MHz)
$\Omega_R$	Fréquence de Rabi
$\odot, \ominus$	Polarisation circulaire gauche, droite
$-, /,  , \backslash$	Polarisation linéaire $0^\circ, 45^\circ, 90^\circ, 135^\circ$
$\psi$	Fonction d'onde
$\rho$	Opérateur de matrice densité
$\rho(\omega)$	Densité d'état
$\rho_m$	Masse volumique ( $m/V$ )
$\sigma$	Écart type
$\sigma^+, \sigma^-$	Excitons neutres polarisés circulairement gauche, droite
$\tau$	Délai entre les impulsions
$\tau_c$	Temps de vie du photon dans la cavité
$\tau_{12}$	Délai entre $\mathcal{E}_1$ et $\mathcal{E}_2$
$\tau_{23}$	Délai entre $\mathcal{E}_2$ et $\mathcal{E}_3$
$\theta_B$	Angle de Bragg
$\Theta_i$	Angle de rotation de Rabi ou aire d'impulsion
$\tilde{\rho}$	Opérateur de matrice densité dans le référentiel tournant
$\varepsilon_{jk}$	Tenseur de contrainte piézoélectrique
$\vec{B}$	Vecteur de Bloch
$\vec{k}$	Vecteur d'onde
$a_0$	Rayon de Bohr de l'exciton
$a_q^\dagger, a_q$	Opérateurs de création et d'annihilation d'un phonon de vecteur d'onde $\vec{q}$
$B$	Biexciton neutre
$c$	Vitesse de la lumière dans le vide ( $299\,792\,458 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1} = 299 \text{ } \mu\text{m} \cdot \text{ps}^{-1}$ )
$c.c.$	Complexe conjugué
$c_s$	Vitesse du son
$D_{c,v}$	Potentiel de déformation des bandes de conduction, de valence
$e$	Charge de l'électron ( $1.602176 \times 10^{-19} \text{ C}$ )
$E_{ph}$	Énergie des phonons acoustiques
$f$	Distance focale
$F_p$	Facteur de Purcell
$h$	Constante de Planck ( $6.626069 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s} = 4134 \text{ } \mu\text{eV} \cdot \text{ps}$ )

$H(t)$	Échelon de Heaviside
$K_2$	Temps caractéristique de l'EID
$k_B$	Constante de Boltzmann ( $1.380648 \times 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} = 86 \text{ } \mu\text{eV} \cdot \text{K}^{-1}$ )
$m^*$	Masse effective
$m_0$	Masse de l'électron ( $9.109381 \times 10^{-31} \text{ kg}$ )
$m_p^*$	Masse réduite du polaron
$M_q^{ij}$	Matrice d'interaction électron-phonon
$n$	Indice de réfraction
$N_q$	Distribution de Bose des phonons
$P_{ij}^s$	Polarisation piézoélectrique
$Q$	Facteur de qualité
$S(\omega)$	Signal FWM mesuré spectralement
$T_1$	Temps de vie des populations
$T_2$	Temps de cohérence
$T_2^*$	Temps de déphasage pur
$T_B$	Temps de vie du biexciton
$t_p$	Temps de vie du polaron
$T_{\Delta_b}$	Période de battement de l'énergie de liaison
$T_\delta$	Période de battement de l'énergie de structure fine
$T_{in}$	Temps caractéristique de diffusion spectrale
$v_g$	Vitesse de groupe ( $d\omega/dk$ )
$v_\phi$	Vitesse de phase ( $\omega/k$ )
$X, Y$	Excitons neutres polarisés linéairement horizontal, vertical
$X^+, X^-$	Exciton chargé (trion) positivement, négativement
$X_{S,T}^*$	Trion négatif excité
$Z$	Poids de la ZPL
$z$	Épaisseur du milieu
$\mathcal{E}$	Amplitude du champ électrique
$\mathcal{F}$	Transformée de Fourier
$\mathcal{F}^{-1}$	Transformée de Fourier inverse
$\mathcal{H}$	Hamiltonien total
$\mathcal{H}_0$	Hamiltonien non-perturbé
$\mathcal{H}_e$	Hamiltonien électronique
$\mathcal{H}_I$	Hamiltonien d'interaction

$\mathcal{H}_{e-ph}$	Hamiltonien d'interaction électron-phonon
$\mathcal{H}_{ph}$	Hamiltonien phononique
$\mathcal{LS}$	<i>Level system</i>
$\mathcal{L}$	Opérateur de dissipation de Lindblad
$\mathcal{P}$	Polarisation
2D-FWM	<i>Two-dimensional four-wave mixing</i>
AFM	<i>Atomic force microscope</i>
AOM	<i>Acousto-optic modulator</i>
As	Arsenic
BQ	Boîte quantique
CCD	<i>Charge-coupled device</i>
D-FWM	<i>Degenerate four-wave mixing</i>
D-SWM	<i>Degenerate six-wave mixing</i>
DBR	<i>Distributed Bragg reflector</i>
DVG	Dispersion de vitesse de groupe
EBO	Équations de Bloch optiques
EID	<i>Excitation-induced dephasing</i>
eV	Électron volt ( $1.602176 \times 10^{-19}$ J)
FFT	<i>Fast Fourier transform</i>
fs, ps, ns	Femtoseconde ( $10^{-15}$ s), picoseconde ( $10^{-12}$ s), nanoseconde ( $10^{-9}$ s)
FWHM	<i>Full width at half maximum</i>
FWM	<i>Four-wave mixing</i>
Ga	Gallium
In	Indium
LA, TA	Longitudinal acoustique, transverse acoustique
LO, TO	Longitudinal optique, transverse optique
MBE	<i>Molecular beam epitaxy</i>
MC	Microcavité
MEB	Microscope électronique à balayage
meV, $\mu$ eV	$10^{-3}$ eV, $10^{-6}$ eV
MHz, THz	$10^6$ Hz, $10^{12}$ Hz
MOCVD	<i>Metalorganic vapour phase epitaxy</i>
NA	<i>Numerical aperture</i>
ND-FWM	<i>Non-degenerate four-wave mixing</i>



---

NIR	<i>Near infrared</i>
nm, $\mu\text{m}$	Nanomètre ( $10^{-9}$ m), micromètre ( $10^{-6}$ m)
$P_i$	Puissance d'excitation
PL	Photoluminescence
SHG	<i>Second-harmonic generation</i>
SK	Stranski-Krastanov
SNR	<i>Signal-to-noise ratio</i>
SWM	<i>Six-wave mixing</i>
T	Température
$T_q$	Température d'activation du processus quadratique
UPB, LPB	<i>Upper polariton branch, lower polariton branch</i>
VIS	Visible
WL	<i>Wetting layer</i>
ZPL	<i>Zero-phonon line</i>



# Bibliographie

- [1] M. Fuechsle, J. A. Miwa, S. Mahapatra, H. Ryu, S. Lee, O. Warschkow, L. C. L. Hollenberg, G. Klimeck, and M. Y. Simmons, “A single-atom transistor,” *Nature Nanotechnology*, vol. 7, no. 4, pp. 242–246, Feb. 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2012.21>
- [2] M. A. Nielsen and I. L. Chuang, *Quantum computation and quantum information*, C. university press, Ed., 2010.
- [3] D. P. DiVincenzo, “The Physical Implementation of Quantum Computation,” *Fortschritte der Physik*, vol. 48, no. 9-11, pp. 771–783, Sep. 2000. [Online]. Available : [http://dx.doi.org/10.1002/1521-3978\(200009\)48:9/11%3C771::aid-prop771%3E3.0.co;2-e](http://dx.doi.org/10.1002/1521-3978(200009)48:9/11%3C771::aid-prop771%3E3.0.co;2-e)
- [4] P. W. Shor, “Scheme for reducing decoherence in quantum computer memory,” *Physical Review A*, vol. 52, no. 4, pp. R2493–R2496, Oct. 1995. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.52.r2493>
- [5] A. M. Steane, “Error Correcting Codes in Quantum Theory,” *Physical Review Letters*, vol. 77, no. 5, pp. 793–797, Jul. 1996. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.77.793>
- [6] P. Schindler, J. T. Barreiro, T. Monz, V. Nebendahl, D. Nigg, M. Chwalla, M. Hennrich, and R. Blatt, “Experimental Repetitive Quantum Error Correction,” *Science*, vol. 332, no. 6033, pp. 1059–1061, May 2011. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1126/science.1203329>
- [7] C. Sayrin, I. Dotsenko, X. Zhou, B. Peaudecerf, T. Rybarczyk, S. Gleyzes, P. Rouchon, M. Mirrahimi, H. Amini, M. Brune, J.-M. Raimond, and S. Haroche, “Real-time quantum feedback prepares and stabilizes photon number states,” *Nature*, vol. 477, no. 7362, pp. 73–77, Aug. 2011. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature10376>
- [8] M. D. Reed, L. DiCarlo, S. E. Nigg, L. Sun, L. Frunzio, S. M. Girvin, and R. J. Schoelkopf, “Realization of three-qubit quantum error correction with superconducting circuits,” *Nature*, vol. 482, no. 7385, pp. 382–385, Feb. 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature10786>
- [9] M. H. Devoret and R. J. Schoelkopf, “Superconducting Circuits for Quantum Information : An Outlook,” *Science*, vol. 339, no. 6124, pp. 1169–1174, Mar. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1126/science.1231930>
- [10] G. Bastard, *Wave mechanics applied to semiconductors*, N. U. S. A. New York, Ed., 1990.
- [11] M. Cardona and Y. Y. Peter, *Fundamentals of semiconductors*, Springer, Ed., 2005.
- [12] C. F. Klingshirn, *Semiconductor optics*, S. Science, Ed., 2012.
- [13] J. Kasprzak, B. Patton, V. Savona, and W. Langbein, “Coherent coupling between distant excitons revealed by two-dimensional nonlinear hyperspectral imaging,”

- Nature Photonics*, vol. 5, no. 1, pp. 57–63, Dec. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2010.284>
- [14] B. Abécassis, M. D. Tessier, P. Davidson, and B. Dubertret, “Self-Assembly of CdSe Nanoplatelets into Giant Micrometer-Scale Needles Emitting Polarized Light,” *Nano Lett.*, vol. 14, no. 2, pp. 710–715, Feb. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1021/nl4039746>
- [15] J.-M. Gerard, “In situ probing at the growth temperature of the surface composition of (InGa)As and (InAl)As,” *Applied Physics Letters*, vol. 61, no. 17, pp. 2096–2098, Oct. 1992. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1063/1.108318>
- [16] G. Juska, V. Dimastrodonato, L. O. Mereni, A. Gocalinska, and E. Pelucchi, “Towards quantum-dot arrays of entangled photon emitters,” *Nature Photonics*, vol. 7, no. 7, pp. 527–531, May 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2013.128>
- [17] T. Mano, M. Abbarchi, T. Kuroda, C. A. Mastrandrea, A. Vinattieri, S. Sanguinetti, K. Sakoda, and M. Gurioli, “Ultra-narrow emission from single GaAs self-assembled quantum dots grown by droplet epitaxy,” *Nanotechnology*, vol. 20, no. 39, pp. 395601+, Sep. 2009. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1088/0957-4484/20/39/395601>
- [18] I. N. Stranski and L. Krastanow, “Sitzungsberichte d. Akad. d. Wissenschaften in Wien, Abt,” *Ib*, vol. 146, pp. 797+, 1937.
- [19] W. Langbein, P. Borri, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. D. Wieck, “Radiatively limited dephasing in InAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 70, no. 3, pp. 033301+, Jul. 2004. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.70.033301>
- [20] P. Lelong and G. Bastard, “Binding energies of excitons and charged excitons in quantum dots,” *Solid State Communications*, vol. 98, no. 9, pp. 819–823, Jun. 1996. [Online]. Available : [http://dx.doi.org/10.1016/0038-1098\(96\)00024-5](http://dx.doi.org/10.1016/0038-1098(96)00024-5)
- [21] R. J. Warburton, C. S. Dürr, K. Karrai, J. P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, and P. M. Petroff, “Charged Excitons in Self-Assembled Semiconductor Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 79, no. 26, pp. 5282–5285, Dec. 1997. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.79.5282>
- [22] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Processus d’interaction entre photons et atomes*, E. Sciences, Ed., 2012.
- [23] P. Borri, W. Langbein, J. Mørk, J. M. Hvam, F. Heinrichsdorff, M. H. Mao, and D. Bimberg, “Dephasing in InAs/GaAs quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 60, pp. 7784–7787, Sep. 1999. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.60.7784>
- [24] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, “Ultralong Dephasing Time in InGaAs Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 87, no. 15, pp. 157401+, Sep. 2001. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.87.157401>
- [25] K. L. Hall, G. Lenz, E. P. Ippen, and G. Raybon, “Heterodyne pump - probe technique for time-domain studies of optical nonlinearities in waveguides,” *Optics Letters*, vol. 17, no. 12, pp. 874+, Jun. 1992. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/ol.17.000874>

- [26] A. Mecozzi, J. Mørk, and M. Hofmann, “Transient four-wave mixing with a collinear pump and probe,” *Optics Letters*, vol. 21, no. 14, pp. 1017+, Jul. 1996. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/ol.21.001017>
- [27] M. Hofmann, S. D. Brorson, J. Mørk, and A. Mecozzi, “Time resolved four-wave mixing technique to measure the ultrafast coherent dynamics in semiconductor optical amplifiers,” *Applied Physics Letters*, vol. 68, no. 23, pp. 3236–3238, Jun. 1996. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1063/1.116559>
- [28] L. Lepetit, G. Chériaux, and M. Joffre, “Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 12, no. 12, pp. 2467–2474, Dec. 1995. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/josab.12.002467>
- [29] C. Dorrer, N. Belabas, J.-P. Likforman, and M. Joffre, “Spectral resolution and sampling issues in Fourier-transform spectral interferometry,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 17, no. 10, pp. 1795–1802, Oct. 2000. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/josab.17.001795>
- [30] B. Patton, “Non-linear Optical Spectroscopy of Single Quantum Dots,” Ph.D. dissertation, Institute of Physics, University of Dortmund, 2004.
- [31] W. Langbein and B. Patton, “Heterodyne spectral interferometry for multidimensional nonlinear spectroscopy of individual quantum systems,” *Optics Letters*, vol. 31, no. 8, pp. 1151+, 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/ol.31.001151>
- [32] J. Kasprzak, B. Patton, and W. Langbein, “Ultrafast nonlinear spectroscopy of individual quantum dots : imaging and coherent coupling,” in *Ultrafast Phenomena in Semiconductors and Nanostructure Materials XII*, vol. 6892. Proc. SPIE 6892, 2008, pp. 68 920Z–68 920Z–9. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1117/12.767661>
- [33] J. Kasprzak and W. Langbein, “Coherent response of individual weakly confined exciton-biexciton systems,” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 29, no. 7, pp. 1766+, Jun. 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/josab.29.001766>
- [34] B. Patton, U. Woggon, and W. Langbein, “Coherent Control and Polarization Readout of Individual Excitonic States,” *Physical Review Letters*, vol. 95, no. 26, pp. 266 401+, Dec. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.95.266401>
- [35] B. Patton, W. Langbein, U. Woggon, L. Maingault, and H. Mariette, “Time- and spectrally-resolved four-wave mixing in single CdTe/ZnTe quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 73, no. 23, Jun. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.73.235354>
- [36] J. Kasprzak and W. Langbein, “Vectorial four-wave mixing field dynamics from individual excitonic transitions,” *Physical Review B*, vol. 78, no. 4, Jul. 2008. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.78.041103>
- [37] J. Kasprzak, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, C. Kistner, C. Schneider, M. Strauss, S. Höfling, A. Forchel, and W. Langbein, “Up on the Jaynes-Cummings ladder of a quantum-dot/microcavity system,” *Nature Materials*, vol. 9, no. 4, pp. 304–308, Mar. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nmat2717>
- [38] F. Albert, K. Sivalertporn, J. Kasprzak, M. Strauß, C. Schneider, S. Höfling, M. Kamp, A. Forchel, S. Reitzenstein, E. A. Muljarov, and W. Langbein, “Microcavity controlled coupling of excitonic qubits,” *Nature Communications*, vol. 4, pp. 1747+, Apr. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/ncomms2764>

- [39] C. Mann, "Mélange à quatre ondes de nanostructures semi-conductrices II-VI," Master's thesis, Institute of Physics, University of Dortmund, Sep. 2000.
- [40] S. Maier, P. Gold, A. Forchel, N. Gregersen, J. Mørk, S. Höfling, C. Schneider, and M. Kamp, "Bright single photon source based on self-aligned quantum dot-cavity systems," *Optics Express*, vol. 22, no. 7, pp. 8136+, Mar. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/oe.22.008136>
- [41] R. I. Kaitouni, O. E. Da"if, A. Baas, M. Richard, T. Paraiso, P. Lugan, T. Guillet, F. M. Genoud, J. D. Ganière, J. L. Staehli, V. Savona, and B. Deveaud, "Engineering the spatial confinement of exciton polaritons in semiconductors," *Phys. Rev. B*, vol. 74, no. 15, pp. 155311+, Oct. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.74.155311>
- [42] I. Rabi, J. Zacharias, S. Millman, and P. Kusch, "A New Method of Measuring Nuclear Magnetic Moment," *Physical Review*, vol. 53, no. 4, p. 318, Feb. 1938. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrev.53.318>
- [43] H. Gibbs, "Incoherent Resonance Fluorescence from a Rb Atomic Beam Excited by a Short Coherent Optical Pulse," *Physical Review A*, vol. 8, no. 1, pp. 446–455, Jul. 1973. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.8.446>
- [44] T. Stievater, X. Li, D. Steel, D. Gammon, D. Katzer, D. Park, C. Piermarocchi, and L. Sham, "Rabi Oscillations of Excitons in Single Quantum Dots," *Physical Review Letters*, vol. 87, no. 13, pp. 133603+, Sep. 2001. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.87.133603>
- [45] J. Erland, K. H. Pantke, V. Mizeikis, V. G. Lyssenko, and J. M. Hvam, "Spectrally resolved four-wave mixing in semiconductors : Influence of inhomogeneous broadening," *Physical Review B*, vol. 50, no. 20, pp. 15047–15055, Nov. 1994. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.50.15047>
- [46] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R. L. Sellin, D. Ouyang, and D. Bimberg, "Rabi oscillations in the excitonic ground-state transition of InGaAs quantum dots," *Physical Review B*, vol. 66, no. 8, pp. 081306+, Aug. 2002. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.66.081306>
- [47] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, and H. Mariette, "Few-particle effects in single CdTe quantum dots," *Physical Review B*, vol. 65, no. 12, Mar. 2002. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.65.121314>
- [48] E. A. Muljarov and R. Zimmermann, "Dephasing in Quantum Dots : Quadratic Coupling to Acoustic Phonons," *Physical Review Letters*, vol. 93, no. 23, pp. 237401+, Nov. 2004. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.93.237401>
- [49] B. Krummheuer, V. Axt, and T. Kuhn, "Theory of pure dephasing and the resulting absorption line shape in semiconductor quantum dots," *Physical Review B*, vol. 65, no. 19, pp. 195313+, May 2002. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.65.195313>
- [50] A. Vagov, V. Axt, and T. Kuhn, "Electron-phonon dynamics in optically excited quantum dots : Exact solution for multiple ultrashort laser pulses," *Physical Review B*, vol. 66, pp. 165312+, Oct. 2002. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.66.165312>
- [51] A. Vagov, V. M. Axt, and T. Kuhn, "Impact of pure dephasing on the nonlinear optical response of single quantum dots and dot ensembles," *Physical Review B*, vol. 67, no. 11, Mar. 2003. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.67.115338>

- [52] G. D. Mahan, *Many-Particle Physics*, S. Science, Ed., 2000.
- [53] P. Borri, W. Langbein, U. Woggon, V. Stavarache, D. Reuter, and A. Wieck, "Exciton dephasing via phonon interactions in InAs quantum dots : Dependence on quantum confinement," *Physical Review B*, vol. 71, no. 11, Mar. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.71.115328>
- [54] E. A. Muljarov and R. Zimmermann, "Nonlinear optical response and exciton dephasing in quantum dots," *physica status solidi (b)*, vol. 243, no. 10, pp. 2252–2256, Aug. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1002/pssb.200668036>
- [55] Y. Benny, Y. Kodriano, E. Poem, D. Gershoni, T. A. Truong, and P. M. Petroff, "Excitation spectroscopy of single quantum dots at tunable positive, neutral, and negative charge states," *Physical Review B*, vol. 86, no. 8, Aug. 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.86.085306>
- [56] A. Berthelot, I. Favero, G. Cassabois, C. Voisin, C. Delalande, P. Roussignol, R. Ferreira, and J. M. Gérard, "Unconventional motional narrowing in the optical spectrum of a semiconductor quantum dot," *Nature Physics*, vol. 2, no. 11, pp. 759–764, Oct. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphys433>
- [57] A. Zrenner, E. Beham, S. Stuffer, F. Findeis, M. Bichler, and G. Abstreiter, "Coherent properties of a two-level system based on a quantum-dot photodiode," *Nature*, vol. 418, no. 6898, pp. 612–614, Aug. 2002. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature00912>
- [58] Q. Q. Wang, A. Muller, P. Bianucci, E. Rossi, Q. K. Xue, T. Takagahara, C. Piermarocchi, A. H. MacDonald, and C. K. Shih, "Decoherence processes during optical manipulation of excitonic qubits in semiconductor quantum dots," *Physical Review B*, vol. 72, no. 3, pp. 035 306+, Jul. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.72.035306>
- [59] 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*, vol. 104, no. 1, pp. 017402+, Jan. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.104.017402>
- [60] B. Krummheuer, V. M. Axt, and T. Kuhn, "Coupled polarization and acoustic-phonon dynamics after optical excitation of quantum dots near surfaces," *Physical Review B*, vol. 72, no. 24, Dec. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.72.245336>
- [61] J. Huneke, A. Krügel, T. Kuhn, A. Vagov, and V. M. Axt, "Impact of strain waves traveling across a quantum dot on the optical response of the dot : Distinction between strain waves of different origin," *Physical Review B*, vol. 78, no. 8, Aug. 2008. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.78.085316>
- [62] J. Huneke, T. Kuhn, and V. M. Axt, "Detecting strain wave propagation through quantum dots by pump-probe spectroscopy : A theoretical analysis," *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 210, no. 1, pp. 012 013+, Feb. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/210/1/012013>
- [63] A. Krügel, A. Vagov, V. Axt, and T. Kuhn, "Monitoring the buildup of the quantum dot polaron : Pump-probe and four-wave mixing spectra from excitons and biexcitons in semiconductor quantum dots," *Physical Review B*, vol. 76, no. 19, Nov. 2007. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.76.195302>

- [64] Q. Mermillod, D. Wigger, V. Delmonte, D. E. Reiter, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, T. Kuhn, G. Nogues, and J. Kasprzak, “Dynamics of excitons in individual InAs quantum dots revealed in four-wave mixing spectroscopy,” *Optica*, vol. 3, no. 4, pp. 377+, Apr. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/optica.3.000377>
- [65] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon, D. Park, D. S. Katzer, and D. G. Steel, “Coherent Optical Control of the Quantum State of a Single Quantum Dot,” *Science*, vol. 282, no. 5393, pp. 1473–1476, Nov. 1998. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1126/science.282.5393.1473>
- [66] P. Michler, *Single quantum dots : Fundamentals, applications and new concepts*, S. Science, Ed., 2003.
- [67] A. J. Ramsay, “A review of the coherent optical control of the exciton and spin states of semiconductor quantum dots,” *Semiconductor Science and Technology*, vol. 25, no. 10, pp. 103 001+, Oct. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1088/0268-1242/25/10/103001>
- [68] L. Monniello, C. Tonin, R. Hostein, A. Lemaitre, A. Martinez, V. Voliotis, and R. Grousson, “Excitation-Induced Dephasing in a Resonantly Driven InAs/GaAs Quantum Dot,” *Physical Review Letters*, vol. 111, no. 2, Jul. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.111.026403>
- [69] I. A. Akimov, J. T. Andrews, and F. Henneberger, “Stimulated Emission from the Biexciton in a Single Self-Assembled II-VI Quantum Dot,” *Physical Review Letters*, vol. 96, no. 6, Feb. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.96.067401>
- [70] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi, and D. Hommel, “Biexciton versus Exciton Lifetime in a Single Semiconductor Quantum Dot,” *Physical Review Letters*, vol. 83, no. 21, pp. 4417–4420, Nov. 1999. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.83.4417>
- [71] R. M. Stevenson, R. J. Young, P. Atkinson, K. Cooper, D. A. Ritchie, and A. J. Shields, “A semiconductor source of triggered entangled photon pairs,” *Nature*, vol. 439, no. 7073, pp. 179–182, Jan. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature04446>
- [72] N. Akopian, N. H. Lindner, E. Poem, Y. Berlatzky, J. Avron, D. Gershoni, B. D. Gerardot, and P. M. Petroff, “Entangled Photon Pairs from Semiconductor Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 96, no. 13, pp. 130 501+, Apr. 2006. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.96.130501>
- [73] A. Dousse, J. Suffczyński, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, and P. Senellart, “Ultrabright source of entangled photon pairs,” *Nature*, vol. 466, no. 7303, pp. 217–220, Jul. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature09148>
- [74] M. Müller, S. Bounouar, K. D. Jöns, M. Glässl, and P. Michler, “On-demand generation of indistinguishable polarization-entangled photon pairs,” *Nature Photonics*, vol. 8, no. 3, pp. 224–228, Feb. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2013.377>
- [75] J. Kasprzak, S. Portolan, A. Rastelli, L. Wang, J. D. Plumhof, O. G. Schmidt, and W. Langbein, “Vectorial nonlinear coherent response of a strongly confined exciton-biexciton system,” *New Journal of Physics*, vol. 15, no. 5, pp. 055 006+, May 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/15/5/055006>



- [76] V. M. Axt, T. Kuhn, A. Vagov, and F. M. Peeters, “Phonon-induced pure dephasing in exciton-biexciton quantum dot systems driven by ultrafast laser pulse sequences,” *Physical Review B*, vol. 72, no. 12, Sep. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.72.125309>
- [77] S. T. Cundiff, “Optical two-dimensional Fourier transform spectroscopy of semiconductor nanostructures [Invited],” *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 29, no. 2, pp. A69+, Jan. 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/josab.29.000a69>
- [78] X. Dai, M. Richter, H. Li, A. D. Bristow, C. Falvo, S. Mukamel, and S. T. Cundiff, “Two-Dimensional Double-Quantum Spectra Reveal Collective Resonances in an Atomic Vapor,” *Physical Review Letters*, vol. 108, no. 19, May 2012. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.108.193201>
- [79] 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*, vol. 9, no. 9, pp. 570–575, Jul. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphys2688>
- [80] B. Urbaszek, R. J. Warburton, K. Karrai, B. D. Gerardot, P. M. Petroff, and J. M. Garcia, “Fine Structure of Highly Charged Excitons in Semiconductor Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 90, no. 24, Jun. 2003. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.90.247403>
- [81] I. A. Akimov, K. V. Kavokin, A. Hundt, and F. Henneberger, “Electron-hole exchange interaction in a negatively charged quantum dot,” *Physical Review B*, vol. 71, no. 7, Feb. 2005. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.71.075326>
- [82] I. Aharonovich, S. Castelletto, D. A. Simpson, C. H. Su, A. D. Greentree, and S. Praver, “Diamond-based single-photon emitters,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 74, no. 7, pp. 076501+, Jul. 2011. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1088/0034-4885/74/7/076501>
- [83] P. Tonndorf, R. Schmidt, R. Schneider, J. Kern, M. Buscema, G. A. Steele, A. Castellanos-Gomez, H. S. J. van der Zant, S. Michaelis de Vasconcellos, and R. Bratschitsch, “Single-photon emission from localized excitons in an atomically thin semiconductor,” *Optica*, vol. 2, no. 4, pp. 347–352, Apr. 2015. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/optica.2.000347>
- [84] M. Koperski, K. Nogajewski, A. Arora, V. Cherkez, P. Mallet, J. Y. Veullen, J. Marcus, P. Kossacki, and M. Potemski, “Single photon emitters in exfoliated WSe<sub>2</sub> structures,” *Nature Nanotechnology*, vol. 10, no. 6, pp. 503–506, May 2015. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2015.67>
- [85] J. J. Pla, K. Y. Tan, J. P. Dehollain, W. H. Lim, J. J. L. Morton, F. A. Zwanenburg, D. N. Jamieson, A. S. Dzurak, and A. Morello, “High-fidelity readout and control of a nuclear spin qubit in silicon,” *Nature*, vol. 496, no. 7445, pp. 334–338, Apr. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature12011>
- [86] J. T. Muhonen, J. P. Dehollain, A. Laucht, F. E. Hudson, R. Kalra, T. Sekiguchi, K. M. Itoh, D. N. Jamieson, J. C. McCallum, A. S. Dzurak, and A. Morello, “Storing quantum information for 30 seconds in a nanoelectronic device,” *Nature Nanotechnology*, vol. 9, no. 12, pp. 986–991, Oct. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2014.211>
- [87] S. G. Carter, T. M. Sweeney, M. Kim, C. S. Kim, D. Solenov, S. E. Economou, T. L. Reinecke, L. Yang, A. S. Bracker, and D. Gammon, “Quantum control of a

- spin qubit coupled to a photonic crystal cavity,” *Nature Photonics*, vol. 7, no. 4, pp. 329–334, Mar. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2013.41>
- [88] J. Hansom, C. H. H. Schulte, C. Le Gall, C. Matthiesen, E. Clarke, M. Hugues, J. M. Taylor, and M. Atatüre, “Environment-assisted quantum control of a solid-state spin via coherent dark states,” *Nature Physics*, vol. 10, no. 10, pp. 725–730, Sep. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphys3077>
- [89] M. Widmann, S.-Y. Lee, T. Rendler, N. T. Son, H. Fedder, S. Paik, L.-P. Yang, N. Zhao, S. Yang, I. Booker, A. Denisenko, M. Jamali, S. A. Momenzadeh, I. Gerhardt, T. Ohshima, A. Gali, E. Janzén, and J. Wrachtrup, “Coherent control of single spins in silicon carbide at room temperature,” *Nature Materials*, vol. 14, no. 2, pp. 164–168, Dec. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nmat4145>
- [90] C. G. Yale, B. B. Buckley, D. J. Christle, G. Burkard, F. J. Heremans, L. C. Bassett, and D. D. Awschalom, “All-optical control of a solid-state spin using coherent dark states,” *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 110, no. 19, pp. 7595–7600, May 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1073/pnas.1305920110>
- [91] F. Fras, Q. Mermillod, G. Nogues, C. Hoarau, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, W. Langbein, and J. Kasprzak, “Multi-wave coherent control of a solid-state single emitter,” *Nature Photonics*, vol. 10, no. 3, pp. 155–158, Feb. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nphoton.2016.2>
- [92] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, and A. Forchel, “Strong coupling in a single quantum dot-semiconductor microcavity system,” *Nature*, vol. 432, no. 7014, pp. 197–200, Nov. 2004. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature02969>
- [93] I. J. Luxmoore, N. A. Wasley, A. J. Ramsay, A. C. T. Thijssen, R. Oulton, M. Hugues, S. Kasture, V. G. Achanta, A. M. Fox, and M. S. Skolnick, “Interfacing Spins in an InGaAs Quantum Dot to a Semiconductor Waveguide Circuit Using Emitted Photons,” *Physical Review Letters*, vol. 110, no. 3, pp. 037402+, Jan. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.110.037402>
- [94] M. Arcari, I. Söllner, A. Javadi, S. Lindskov Hansen, S. Mahmoodian, J. Liu, H. Thyrrestrup, E. . H. Lee, J. . D. Song, S. Stobbe, and P. Lodahl, “Near-Unity Coupling Efficiency of a Quantum Emitter to a Photonic Crystal Waveguide,” *Physical Review Letters*, vol. 113, no. 9, Aug. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.113.093603>
- [95] Y. Zhang, A. W. Brown, and M. Xiao, “Observation of interference between four-wave mixing and six-wave mixing,” *Optics Letters*, vol. 32, no. 9, pp. 1120+, 2007. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1364/ol.32.001120>
- [96] Y. Zhang, B. Anderson, and M. Xiao, “Efficient energy transfer between four-wave-mixing and six-wave-mixing processes via atomic coherence,” *Physical Review A*, vol. 77, no. 6, Jun. 2008. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.77.061801>
- [97] Y. Zhang, U. Khadka, B. Anderson, and M. Xiao, “Temporal and Spatial Interference between Four-Wave Mixing and Six-Wave Mixing Channels,” *Physical Review Letters*, vol. 102, no. 1, Jan. 2009. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.102.013601>
- [98] Y. Zhang, Z. Nie, and M. Xiao, *Coherent Control of Four-Wave Mixing*, S. Science, Ed., 2011.

- [99] Y. Zhang, F. Wen, and M. Xiao, *Quantum Control of Multi-Wave Mixing*, J. Wiley, Ed., 2013.
- [100] V. M. Axt, S. R. Bolton, U. Neukirch, L. J. Sham, and D. S. Chemla, “Evidence of six-particle Coulomb correlations in six-wave-mixing signals from a semiconductor quantum well,” *Physical Review B*, vol. 63, no. 11, Feb. 2001. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.63.115303>
- [101] D. B. Turner and K. A. Nelson, “Coherent measurements of high-order electronic correlations in quantum wells,” *Nature*, vol. 466, no. 7310, pp. 1089–1092, Aug. 2010. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nature09286>
- [102] H. Tahara, Y. Ogawa, F. Minami, K. Akahane, and M. Sasaki, “Long-Time Correlation in Non-Markovian Dephasing of an Exciton-Phonon System in InAs Quantum Dots,” *Physical Review Letters*, vol. 112, no. 14, Apr. 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.112.147404>
- [103] ———, “Generation of undamped exciton-biexciton beats in InAs quantum dots using six-wave mixing,” *Physical Review B*, vol. 89, no. 19, May 2014. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.89.195306>
- [104] A. Bambini and P. R. Berman, “Analytic solutions to the two-state problem for a class of coupling potentials,” *Physical Review A*, vol. 23, no. 5, pp. 2496–2501, May 1981. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.23.2496>
- [105] L. Viola and S. Lloyd, “Dynamical suppression of decoherence in two-state quantum systems,” *Physical Review A*, vol. 58, no. 4, pp. 2733–2744, Oct. 1998. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physreva.58.2733>
- [106] M. Minkov and V. Savona, “Radiative coupling of quantum dots in photonic crystal structures,” *Physical Review B*, vol. 87, no. 12, Mar. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.87.125306>
- [107] N. Gregersen, P. Kaer, and J. Mørk, “Modeling and Design of High-Efficiency Single-Photon Sources,” *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, vol. 19, no. 5, pp. 1–16, 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1109/jstqe.2013.2255265>
- [108] M. Munsch, N. S. Malik, E. Dupuy, A. Delga, J. Bleuse, J. M. Gérard, J. Claudon, N. Gregersen, and J. Mørk, “Dielectric GaAs Antenna Ensuring an Efficient Broadband Coupling between an InAs Quantum Dot and a Gaussian Optical Beam,” *Physical Review Letters*, vol. 110, no. 17, Apr. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.110.177402>
- [109] Q. Mermillod, T. Jakubczyk, V. Delmonte, A. Delga, E. Peinke, J. M. Gérard, J. Claudon, and J. Kasprzak, “Harvesting, Coupling, and Control of Single-Exciton Coherences in Photonic Waveguide Antennas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 116, pp. 163903+, Apr. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.116.163903>
- [110] S. Hameau, Y. Guldner, O. Verzele, R. Ferreira, G. Bastard, J. Zeman, A. Lemaître, and J. M. Gérard, “Strong Electron-Phonon Coupling Regime in Quantum Dots : Evidence for Everlasting Resonant Polarons,” *Physical Review Letters*, vol. 83, no. 20, pp. 4152–4155, Nov. 1999. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevlett.83.4152>
- [111] E. A. Zibik, L. R. Wilson, R. P. Green, G. Bastard, R. Ferreira, P. J. Phillips, D. A. Carder, J.-P. Wells, J. W. Cockburn, M. S. Skolnick, M. J. Steer, and M. Hopkinson,

- “Intraband relaxation via polaron decay in InAs self-assembled quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 70, no. 16, pp. 161305+, Oct. 2004. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1103/physrevb.70.161305>
- [112] I. Yeo, P. L. de Assis, A. Gloppe, E. Dupont-Ferrier, P. Verlot, N. S. Malik, E. Dupuy, J. Claudon, J. M. Gérard, A. Auffèves, G. Nogues, S. Seidelin, J. P. Poizat, O. Arcizet, and M. Richard, “Strain-mediated coupling in a quantum dot-mechanical oscillator hybrid system,” *Nature Nanotechnology*, vol. 9, no. 2, pp. 106–110, Dec. 2013. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1038/nnano.2013.274>
- [113] P. Stepanov, A. Delga, N. Gregersen, E. Peinke, M. Munsch, J. Teissier, J. Mørk, M. Richard, J. Bleuse, J.-M. Gérard, and J. Claudon, “Highly directive and Gaussian far-field emission from giant photonic trumpets,” *Applied Physics Letters*, vol. 107, no. 14, pp. 141106+, Oct. 2015. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1063/1.4932574>
- [114] D. Cadeddu, J. Teissier, F. R. Braakman, N. Gregersen, P. Stepanov, J.-M. Gérard, J. Claudon, R. J. Warburton, M. Poggio, and M. Munsch, “A fiber-coupled quantum-dot on a photonic tip,” *Applied Physics Letters*, vol. 108, no. 1, pp. 011112+, Jan. 2016. [Online]. Available : <http://dx.doi.org/10.1063/1.4939264>

## Résumé

La décohérence dans les solides est un problème majeur vers la réalisation d'un processeur quantique basé sur l'utilisation de boîtes quantiques (BQs) semiconductrices comme qubits optiquement actifs. Mesurer et contrôler la cohérence optique de tels qubits s'avère donc primordial, tant d'un point de vue technologique que fondamental. Cependant, leurs tailles nanométriques, associée aux temps de vie sub-nanosecondes de leurs transitions optiques, rend les mesures expérimentales très délicates.

Ce travail de thèse propose une étude détaillée des mécanismes de déphasage et de couplage cohérent de complexes excitoniques fortement confinés dans des BQs InAs/GaAs individuelles. Pour réaliser ces mesures, j'ai développé une expérience de mélange à quatre ondes hétérodyne sensible à l'amplitude et à la phase du champ électrique émis par une BQ unique. Ce dispositif permet de mesurer le temps de vie et de cohérence d'un exciton unique, même en présence d'élargissement inhomogène. Pour augmenter l'interaction lumière-matière et l'efficacité d'extraction du signal, l'utilisation de nanostructures photoniques s'est avérée indispensable. La sensibilité optique du dispositif m'a permis d'étudier en détail les mécanismes d'interaction exciton-phonon, source importante de décohérence dans les solides, comme la formation du polaron acoustique, le couplage quadratique aux phonons acoustiques, et le déphasage induit pendant l'excitation. Par ailleurs, la réalisation de spectres bidimensionnels m'a permis de révéler les couplages cohérents entre différentes transitions excitoniques. Enfin, je présente un nouveau protocole de mélange multi-ondes permettant de contrôler la réponse cohérente d'un exciton unique que je propose d'appliquer sur une paire de BQs pour de contrôler le couplage radiatif longue distance, étape fondamentale vers la réalisation d'une porte logique quantique dans les solides.

## Abstract

Decoherence in solids is a major issue towards the realization of a quantum processor based on semiconductor quantum dots (QDs) as optically active qubits. Measuring and controlling the optical coherence of such qubits is required in their fundamental studies, paving a way for technological applications. However, their nanometer size combined to the sub-nanosecond lifetime of their optical transitions, render experimental measurements very challenging.

This thesis presents a detailed study of the dephasing mechanisms and the coherent coupling of excitonic complexes strongly confined in individual InAs/GaAs QDs. To achieve these measurements, I developed an heterodyne four-wave mixing experiment sensitive to the amplitude and phase of the electric field emitted by a single QD. With this setup one can measure the lifetime and the coherence time of a single exciton, even in the presence of inhomogeneous broadening. To increase the light-matter interaction and the extraction efficiency of the signal, the use of photonic nanostructures has proved to be indispensable. The optical sensitivity of the setup allowed me to study in detail the mechanisms of exciton-phonon interaction, which is an important source of decoherence in solids, like the acoustic polaron formation, the quadratic coupling to acoustic phonons, and the excitation induced dephasing. Furthermore, by inferring two-dimensional spectra, I demonstrate coherent couplings between various exciton complexes. Finally, I highlight a new multi-wave mixing protocol to control the coherent response of a single exciton, and I propose to employ it to control long-range radiative coupling between two QDs, which is a fundamental step towards achieving a quantum logic gate in solids.