Autocorrélation en champ et en intensité

Les interférences et la notion de cohérence en optique sont profondément reliées aux fonctions de corrélation du champ électrique. Ces fonctions sont d'une importance primordiale lorsqu'il s'agit de mesurer des interférences à deux photons, ce que nous considérerons au chapitre 4. Ici, nous définissons les fonctions d'autocorrélation du champ et plus spécifiquement celles du second et du quatrième ordre, qui sont appelées respectivement $g^{(1)}(\tau)$, autocorrélation du champ, et $g^{(2)}(\tau)$, autocorrélation de l'intensité. Si $g^{(1)}(\tau)$ est directement reliée au profil spectral de la source étudiée, $g^{(2)}(\tau)$ permet, elle, de mesurer la statistique d'un faisceau de photons. En particulier, dans le cas d'une source de photons uniques, l'autocorrélation de l'intensité présente un creux caractéristique du dégroupement des photons.

Différents montages expérimentaux sont utilisés pour mesurer ces deux fonctions d'autocorrélation et nous les employons afin de comprendre le comportement de l'émetteur en fonction de la puissance d'excitation et d'ainsi caractériser de manière rigoureuse et robuste le temps de vie T_1 et le temps de relaxation de la cohérence T_2 des boîtes QDIII-bis et B47-9. Nous constatons également que $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ sont affectées par la présence d'un fond parasite dû au laser d'excitation, dont l'effet est le sujet principal du chapitre 5. Enfin, à très basse puissance d'excitation, nous mesurons le dégroupement des photons de photoluminescence malgré le fait qu'ils sont essentiellement émis par diffusion élastique du laser d'excitation. Une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ derrière un filtre ne conservant que les photons émis dans la largeur de raie du laser conduit cependant à une perte du dégroupement, qui se trouve donc être le fruit d'interférences entre les diffusions élastique et inélastique des photons d'excitation.

3.1	Fonctions de corrélation du champ	76	
3.2	Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$	78	
3.3	Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$	89	
3.4	Effets d'un filtrage spectral sur le dégroupement des photons	01	
Conclusion du chapitre			

3.1 Fonctions de corrélation du champ

3.1.1 Définitions

Nous allons utiliser régulièrement les fonctions de corrélation du champ électrique telles qu'elles ont été définies par Roy J. Glauber^{*}.

Tout d'abord, on se place au niveau d'un détecteur, au point \vec{r} , à l'instant t. On considère un champ électrique polarisé rectilignement, ce qui permet de l'écrire comme un champ scalaire $E(\vec{r}, t)$, et, comme précédemment, on le décompose suivant ses composantes de fréquences positives et négatives :

$$E(\vec{r},t) = E^{(+)}(\vec{r},t) + E^{(-)}(\vec{r},t)$$
(3.1.1)

avec

$$E^{(+)}(\vec{r},t) = \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_{\vec{k}} a_{\vec{k}} e^{-i\nu_{\vec{k}}t + i\vec{k}\cdot\vec{r}}$$
(3.1.2)

$$E^{(-)}(\vec{r},t) = \sum_{\vec{k}} \mathcal{E}_{\vec{k}} a^{\dagger}_{\vec{k}} e^{i\nu_{\vec{k}}t - i\vec{k}\cdot\vec{r}}$$
(3.1.3)

où pour chaque mode de vecteur d'onde \vec{k} , $v_{\vec{k}}$ est la fréquence du champ, $\mathcal{E}_{\vec{k}}$ l'amplitude, et $a_{\vec{k}}$ et $a_{\vec{k}}^{\dagger}$ les opérateurs annihilation et création.

À partir de ces champs, on peut définir de façon générale la fonction de corrélation d'ordre n :

$$G^{(n)}(\vec{r}_{1},\ldots,\vec{r}_{2n};t_{1},\ldots,t_{2n}) = \left\langle E^{(-)}(\vec{r}_{1},t_{1})\ldots E^{(-)}(\vec{r}_{2n},t_{2n}) E^{(+)}(\vec{r}_{1},t_{1})\ldots E^{(+)}(\vec{r}_{2n},t_{(2n)}) \right\rangle \quad (3.1.4)$$

et sa version normalisée, aussi appelée degré de cohérence d'ordre n :

$$g^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{2n}; t_1, \dots, t_{2n}) = \frac{G^{(n)}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_{2n}; t_1, \dots, t_{2n})}{\prod_{j=1}^{2n} \sqrt{G^{(1)}(\vec{r}_j, \vec{r}_j; t_j, t_j)}}$$
(3.1.5)

En réalité, nous n'utiliserons que les fonctions du premier et du deuxième ordre, qui s'écrivent, dans l'hypothèse d'un champ stationnaire :

$$G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle$$
(3.1.6)

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) \right\rangle$$
(3.1.7)

^{* [}GLAUBER 1963]. Les définitions des fonctions de corrélation sont reprises dans tous les ouvrages de référence d'optique quantique. On pourra les retrouver par exemple dans [Scully & ZUBAIRY 1997, cf. § 4.2, p. 111].

Si le champ est stationnaire, cela signifie que l'on peut réduire la dépendance temporelle à un simple écart τ entre les temps^{*}. Ne considérer qu'une seule source permet de s'affranchir des dépendances spatiales dans les expressions précédentes.

Les versions normalisées s'écrivent alors :

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{G^{(1)}(\tau)}{G^{(1)}(0)}$$
(3.1.8)

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{G^{(2)}(\tau)}{\left[G^{(1)}(0)\right]^2}$$
(3.1.9)

où on notera que $G^{(1)}(0) = \langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t) \rangle$ est proportionnel à l'intensité du signal détecté.

Pour calculer ces fonctions de corrélation, l'idée la plus commune est de se ramener au dipôle émetteur en utilisant les considérations exposées au paragraphe 1.4.4 (p. 35) et en particulier la relation (1.4.27) qui établit que $E^{(\pm)}(t) \propto S_{\mp}(t)$. Ainsi, on aura par exemple $G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle = \left\langle S_{+}(t) S_{-}(t+\tau) \right\rangle$

3.1.2 Passage entre le référentiel du laboratoire et le référentiel tournant du laser

Les fonctions de corrélation seront souvent exprimées dans le référentiel tournant du laser d'excitation, où l'on peut utiliser les équations de Bloch. Les grandeurs exprimées dans le référentiel tournant seront alors surmontées d'un tilde ~ (par exemple $\tilde{G}^{(1)}(\tau)$).

Lorsque l'on remplace $E^{(\pm)}(t)$ (référentiel du laboratoire) par $\tilde{E}^{(\pm)}(t)$, il faut prendre en compte la phase accumulée depuis l'origine des temps t_0 jusqu'à l'instant t. Ainsi :

$$E^{(\pm)}(t) = \tilde{E}^{(\pm)}(t) \ e^{\pm i\phi_{t_0 \to t}}$$
(3.1.10)

où $\phi_{t_0 \to t}$ est la phase accumulée de t_0 à t. De même, on aura :

$$S_{\pm}(t) = \tilde{S}_{\pm}(t) \ \mathrm{e}^{\pm \mathrm{i}\phi_{t_0 \to t}}$$
 (3.1.11)

Pour écrire ces expressions, les fluctuations du laser doivent être lentes devant les fluctuations dues à la relaxation naturelle dans la boîte, c'est-à-dire que le temps de cohérence du laser $T_L \gg T_1, T_2$.

^{*} Dans le cas de $G^{(1)}$, il n'y a que deux temps t_1 et t_2 en jeu, et dans ce cas $\tau = t_2 - t_1$. Le cas de $G^{(2)}$ est plus délicat étant donné que quatre temps sont en jeu. En réalité, cette définition est choisie pour correspondre aux mesures que nous ferons par la suite, pour lesquelles on a $t_1 = t_4$ et $t_2 = t_3$. L'écart τ s'exprime donc à nouveau $\tau = t_2 - t_1$.

3.2 Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$

Intéressons-nous tout d'abord à la fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}(\tau)$ pour le champ émis par une boîte quantique excitée à résonance. Nous la mesurons à l'aide d'un interféromètre de Michelson, le principe de cette mesure étant expliqué ensuite, avant de finir par les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour QDIII-bis et B47-9.

3.2.1 $g^{(1)}(\tau)$ pour l'émission de la boîte seule

Le calcul résumé ici est détaillé dans [NGUYEN 2011, cf. § A.1.3, p. 177]. Il reprend la méthode exposée dans [Scully & ZUBAIRY 1997, cf. p. 296–307], tout en incluant les deux types de relaxation en T_1 et en T_2 .

Le principe principal est de changer de base propre du système à deux niveaux : on passe de $(|g\rangle, |e\rangle)$ à $(|-\rangle, |+\rangle)$, telle que :

$$|\pm\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|e\rangle \pm |g\rangle) \tag{3.2.1}$$

En effectuant le changement de variables dans les équations d'évolution (1.4.21a) et (1.4.21b) (p. 19) du chapitre 1, on découple les termes de population des termes de cohérence. Cela permet de résoudre les équations analytiquement, et en particulier d'obtenir la relation entre $\langle S_{-}(t + \tau) \rangle$ en fonction des valeurs moyennes des opérateurs à *t*. On peut ainsi appliquer le théorème de régression quantique pour obtenir l'expression du corrélateur $\langle \tilde{S}_{+}(t) \tilde{S}_{-}(t + \tau) \rangle$, et donc finalement de $g^{(1)}(\tau)$.

Passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire

En utilisant la relation (3.1.11), le passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire fait apparaître un facteur de phase accumulée par le laser entre t et $t + \tau$ ($\tau > 0$) :

$$\left\langle S_{+}(t) S_{-}(t+\tau) \right\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\phi_{t\to t+\tau}} \cdot \left\langle \tilde{S}_{+}(t) \tilde{S}_{-}(t+\tau) \right\rangle$$
(3.2.2)

La phase $\phi_{t \to t+\tau}$ accumulée entre t et $t + \tau$ est constituée d'une part oscillant à ω_{L} et d'une part aléatoire, telles que :

$$e^{-i\phi_{t\to t+\tau}} = e^{-i\omega_{\rm L}\tau} \cdot \langle e^{i\theta} \rangle \tag{3.2.3}$$

où θ est une phase qui suit une marche aléatoire dont le taux de diffusion est $T_{\rm L} = 1/T_{\rm L}$. De cette façon, on obtient :

$$\langle \mathbf{e}^{\mathbf{i}\theta} \rangle = \sum P(\theta) \, \mathbf{e}^{\mathbf{i}\theta} \, \mathrm{d}\theta = \mathbf{e}^{-\frac{\tau}{T_{\mathrm{L}}}}$$
(3.2.4)

où $P(\theta)$ est la densité de probabilité d'un bruit blanc gaussien sur θ .

Pour plus de précisions sur l'intégration de cette phase aléatoire, on pourra se référer à [*ibid.*, cf. § 11.4.1, p. 342–345].

Au final, le passage du référentiel tournant au référentiel du laboratoire s'écrira :

$$\left\langle S_{+}(t) S_{-}(t+\tau) \right\rangle = \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\mathrm{L}}\tau} \cdot \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_{\mathrm{L}}}} \cdot \left\langle \tilde{S}_{+}(t) \tilde{S}_{-}(t+\tau) \right\rangle$$
(3.2.5)

Fonction de corrélation du premier ordre $g^{(1)}$

Dans [NGUYEN 2011, cf. expression A.53, p. 182], Hai-Son Nguyen établit l'expression suivante pour $\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle$, dans le référentiel tournant du laser^{*} :

$$\left\langle \tilde{S}_{+}(t) \, \tilde{S}_{-}(t+\tau) \right\rangle = \frac{\Omega^{2} T_{1} T_{2}}{2(1+\Omega^{2} T_{1} T_{2})} \cdot \left[\frac{\frac{T_{2}}{2T_{1}}}{1+\Omega^{2} T_{1} T_{2}} + \frac{1}{2} \, \mathrm{e}^{-\frac{\tau}{T_{2}}} + \frac{1}{2} \, \mathrm{e}^{-\eta\tau} \cdot \left[\tilde{\alpha} \cos(\nu\tau) + \tilde{\beta} \sin(\nu\tau) \right] \right]$$
(3.2.6)

avec

$$\eta = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right] \qquad \nu = \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left[\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right]^2}$$

$$\tilde{\alpha} = 1 - \frac{T_2}{T_1(1 + \Omega^2 T_1 T_2)} \qquad \tilde{\beta} = \frac{\Omega^2 T_1(3T_2 - T_1) - \frac{(T_1 - T_2)^2}{T_1 T_2}}{2\nu T_1(1 + \Omega^2 T_1 T_2)}$$
(3.2.7)

En observant le préfacteur, on reconnaît l'expression (1.4.31) (p. 36) de l'intensité totale émise en régime stationnaire $\langle I \rangle^{(st)}$, à désaccord nul ($\Delta = 0$), et plus précisément de la population de l'état excité $\rho_{bb}^{(st)} = \langle S_+(t)S_-(t) \rangle$. Pour passer maintenant au $g^{(1)}(\tau)$ dans le référentiel du laboratoire, il faut donc écrire :

$$g^{(1)}(\tau) = e^{-i\omega_{\rm L}\tau} \cdot e^{-\frac{\tau}{T_{\rm L}}} \frac{\tilde{G}^{(1)}(\tau)}{\tilde{G}^{(1)}(0)}$$
(3.2.8)

$$= e^{-i\omega_{\rm L}\tau} \cdot e^{-\frac{\tau}{T_{\rm L}}} \frac{\left\langle \tilde{S}_+(t)\,\tilde{S}_-(t+\tau)\right\rangle}{\left\langle S_+(t)\,S_-(t)\right\rangle} \tag{3.2.9}$$

$$= e^{-i\omega_{L}\tau} \cdot e^{-\frac{\tau}{T_{L}}} \cdot \left[\frac{\frac{T_{2}}{2T_{1}}}{1+\Omega^{2}T_{1}T_{2}} + \frac{1}{2}e^{-\frac{\tau}{T_{2}}} + \frac{1}{2}e^{-\eta\tau} \cdot \left[\tilde{\alpha}\cos(\nu\tau) + \tilde{\beta}\sin(\nu\tau)\right]\right]$$
(3.2.10)

^{*} Notez que l'expression [NGUYEN 2011, cf. expression A.53, p. 182] est en réalité $\langle S_+(t)S_-(t+\tau)\rangle$ et non $g^{(1)}(\tau)$ et que le préfacteur $e^{i\omega_0 t}$ doit être remplacé par $e^{i\omega_L \tau}$, qui représente la phase accumulée par le laser entre t et $t + \tau$, en négligeant les fluctuations. En retirant ce préfacteur, on obtient donc l'expression dans le référentiel tournant $\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle$. De plus, l'ordre des temps dans le corrélateur est inversé dans la référence par rapport au formalisme que nous utilisons ici, ce qui change le signe de la phase. Cela n'a toutefois aucune importance pour les mesures, puisque nous ne mesurons que le module $|g^{(1)}(\tau)|$, comme nous le verrons au paragraphe 3.2.3.

On remarquera que $g^{(1)}(\tau)$ est sensible à T_1 et T_2 de manière séparée. Autrement dit, on ne peut pas les échanger, ce qui ne sera pas le cas pour $g^{(2)}(\tau)$ comme nous le verrons au paragraphe 3.3.3 (p. 91). Nous pouvons donc utiliser les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour estimer T_1 et T_2 . La plus précise des deux valeurs sera ensuite fixée dans les ajustements sur le $g^{(2)}(\tau)$.

3.2.2 $g^{(1)}(\tau)$ en ajoutant un champ laser diffusé

L'expression (3.2.10) de $g^{(1)}(\tau)$ ne peut pas s'ajuster seule sur une mesure réelle. Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.3.4 (p. 69), les mesures de spectres de PLE résonnante et leur étude en polarisation mettent en lumière la présence d'un fond parasite lié à la diffusion du laser d'excitation, par un ou plusieurs diffuseurs présents dans le volume observé par le système de détection. Or en excitant à la résonance, le laser d'excitation est cohérent avec le signal de photoluminescence et donc susceptible d'interférer avec lui. Pour modéliser $g^{(1)}(\tau)$ tel qu'il est mesuré, il ne suffit donc pas d'ajouter $g^{(1)}(\tau)$ pour le champ du laser et pour le champ de photoluminescence d'une boîte quantique, il faut prendre en compte les interférences entre les deux.

Nous ajoutons à présent l'hypothèse d'un diffuseur parfaitement élastique situé quelque part dans le mode observé, et susceptible de diffuser un champ électrique d'amplitude proportionnelle au champ d'excitation du laser. Ainsi on remplace l'opérateur S_- par la somme $S_- + \alpha$ et S_+ par $S_+ + \alpha^*$. S_{\pm} représente la contribution du dipôle de la boîte quantique, identique à précédemment, tandis que α est la contribution du champ diffusé par un diffuseur élastique externe, parfaitement proportionnel au champ du laser. Dans le référentiel tournant du laser, il s'agit donc d'une constante complexe $\tilde{\alpha}$. Le corrélateur $\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle$ est alors remplacé par :

$$\tilde{G}^{(1)}(\tau) \propto \left\langle \left(\tilde{S}_{+}(t) + \tilde{\alpha}^{*}\right) \left(\tilde{S}_{-}(t+\tau) + \tilde{\alpha}\right) \right\rangle$$
(3.2.11)

$$= \left\langle \tilde{S}_{+}(t) \, \tilde{S}_{-}(t+\tau) \right\rangle + |\tilde{\alpha}|^{2} + \left[\left\langle \tilde{S}_{+}(t) \right\rangle \, \tilde{\alpha} + \left\langle \tilde{S}_{-}(t) \right\rangle \, \tilde{\alpha}^{*} \right] \tag{3.2.12}$$

On rappelle que $\langle \tilde{S}_+(t) \tilde{S}_-(t+\tau) \rangle$ est donné par l'expression (3.2.6) et que $\langle \tilde{S}_+(t) \rangle$ est égal à $\tilde{\rho}_{ge}^{(\text{st})}$ donné par l'expression (1.4.23) (p. 35). L'expression ci-dessus est donc établie. Pour obtenir $g^{(1)}(\tau)$, il reste à normaliser par la valeur à $\tau \to +\infty$.

3.2.3 Interféromètre de Michelson

La manière la plus simple de mesurer $g^{(1)}(\tau)$ est d'enregistrer un interférogramme à l'aide, par exemple, d'un interféromètre de Michelson représenté sur la figure 3.1.

La différence de marche δ entre les deux bras de l'interféromètre correspond à un retard τ :

$$\tau = \frac{c}{\delta} \tag{3.2.13}$$



FIGURE 3.1 — Schéma d'un interféromètre de Michelson. La différence de marche δ est la différence de longueur optique entre les deux bras, la lumière décrivant un aller-retour dans $\Delta L = \delta/2$.

Le champ émis par la source étant supposé stationnaire, on peut écrire le champ électrique en sortie de l'interféromètre [Fox 2006, cf. § 2.3, p. 16] :

$$E_{\text{out}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[E(t) + E(t+\tau) \right]$$
(3.2.14)

L'intensité observée par le détecteur est finalement la moyenne temporelle du module carré du champ, sur le temps t_D d'intégration du détecteur. En se rappelant les expressions (3.1.6) et (3.1.8), et en considérant le temps t_D très long devant le temps caractéristique des fluctuations du système à deux niveaux, on retrouvera :

$$\bar{l} \propto \overline{|E_{\text{out}}(t)|^2} \tag{3.2.15}$$

$$= I_0 \left[1 + \text{Re} \left[g^{(1)}(\tau) \right] \right]$$
(3.2.16)

où la notation \overline{I} représente la moyenne sur le temps d'intégration t_D . Si les processus gouvernant les fluctuations du système à deux niveaux sont stationnaires et ergodiques, cette moyenne est égale à la moyenne d'ensemble $\langle I \rangle$.

Or le contraste des franges *C* à un certain retard τ dans l'interféromètre τ est défini comme :

$$C(\tau) = \frac{I_{\max}(\tau) - I_{\min}(\tau)}{I_{\max}(\tau) + I_{\min}(\tau)}$$
(3.2.17)

où $I_{max}(\tau)$ et $I_{min}(\tau)$ sont respectivement les intensités des franges brillantes et sombres au retard τ .

Cela implique finalement que la mesure du contraste est une mesure du module de la fonction $g^{(1)}(\tau)$:

$$\langle I \rangle = I_0 \left[1 + \left| g^{(1)}(\tau) \right| \cos(\omega_0 t) \right]$$
 (3.2.18)

où ω_0 est la pulsation centrale du champ *E*.

3.2.4 Théorème de Wiener-Khintchine

L'un des intérêts de la mesure de la fonction $g^{(1)}$ est qu'elle permet d'accéder au spectre de la source observée en utilisant le théorème de Wiener-Khintchine [MANDEL & WOLF 1995, cf. § 2.4.1, p. 56–60].

Tout d'abord on considère l'amplitude du champ électrique comme une fonction aléatoire E(t) gouvernée par un processus stationnaire tel que l'intégrale suivante existe :

$$\hat{E}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) \,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega t} \,\mathrm{d}t \tag{3.2.19}$$

On définit alors le spectre $I(\omega)$ de E(t) :

$$I(\omega) = \left\langle |\hat{E}(\omega)|^2 \right\rangle \tag{3.2.20}$$

Le théorème de Wiener-Khintchine établit que le spectre $I(\omega)$ de E(t) est égal à la transformée de Fourier de $G^{(1)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle$, soit :

$$I(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} G^{(1)}(\tau) \,\mathrm{e}^{\mathrm{i}\omega\tau} \,\mathrm{d}\tau$$
(3.2.21)

Cette formule peut parfois être prise comme définition de la densité spectrale de puissance. On a également :

$$G^{(1)}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(\omega) \,\mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega\tau} \,\mathrm{d}\tau \tag{3.2.22}$$

On peut aussi utiliser la fonction d'autocorrélation normalisée. De manière plus pratique, nous utiliserons les relations qui suivent :

$$g^{(1)}(\tau) \propto \text{TF}[I(\omega)]$$
 (3.2.23a)

$$I(\omega) \propto \text{TF}^{-1} \left| g^{(1)}(\tau) \right|$$
 (3.2.23b)

où TF et TF^{-1} désignent respectivement la transformée de Fourier et la transformée de Fourier inverse.

3.2.5 Techniques de mesure

En pratique, notre interféromètre n'est pas strictement un interféromètre de Michelson, mais un interféromètre de Mach-Zehnder replié, représenté sur la figure 3.2 : il utilise des coins de cube en lieu et place des simples miroirs plans d'un interféromètre de Michelson. Les coins de cube assurent le parallélisme entre les modes sortants des deux bras sans qu'il soit nécessaire de régler leur angle. Pour optimiser le recouvrement de ces modes, on n'optimise que la position latérale des coins de cube. Cette configuration donne aussi accès aux deux modes sortants de



FIGURE 3.2 — Schéma de l'interféromètre de Mach-Zehnder replié, utilisé dans notre montage.



FIGURE 3.3 — Principe de la mesure du contraste effectuée avec l'interféromètre de Michelson.

l'interféromètre, alors que dans un interféromètre de Michelson, l'un des modes est réfléchi vers l'entrée. Ce montage est donc assez souple d'utilisation et peut être converti en interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss ou de Hong–Ou–Mandel (qui seront décrits par la suite).

La ligne à retard utilisée comporte deux niveaux de déplacement. Tout d'abord, un niveau constitué par une platine de translation Newport M-IMS400PP. Sa course de 400 mm permet de faire des mesures de contraste jusqu'à des retards de 2,5 ns environ*. La précision de son positionnement est de l'ordre du micromètre, ce qui est insuffisant pour échantillonner correctement les franges[†]. Ensuite, un niveau de positionnement fin, constitué d'une platine de translation équipée d'un actuateur Newport NanoPZ PZA12, qui a une course de 12,5 mm et un pas minimal de l'ordre de 30 nm. Ce sera donc grâce à lui que l'on pourra échantillonner correctement les franges.

La procédure d'enregistrement de l'interférogramme est expliquée sur la figure 3.3. Pour chaque point $C(\tau)$ de la mesure de contraste, le retard τ est ajusté avec le déplacement grossier, puis on utilise le déplacement fin pour mesurer les franges autour du retard τ . On détermine ainsi $I_{\max}(\tau)$ et $I_{\min}(\tau)$, ce qui permet d'établir $C(\tau) = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}}$.

L'enregistrement d'un interférogramme prend de quinze à trente minutes suivant le nombre de points voulus.

3.2.6 Mesures de $g^{(1)}(\tau)$

Nous effectuons en général les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ en fonction de la puissance d'excitation, puisqu'il s'agit du seul paramètre pouvant ici être modifié indépendamment des autres. Sur la figure 3.4, on peut voir un ensemble de mesures de $g^{(1)}(\tau)$ effectué en changeant la puissance d'excitation, pour les boîtes B47-9 (courbes (a)) et QDIII-bis (courbes (b)).

Les ajustements théoriques présentés (courbes rouges) ne sont pas possibles sans la prise en compte d'un fond parasite lié au laser. Nous utilisons donc l'expression (3.2.12) (p. 80) pour ajuster les données expérimentales. La courbe en pointillés verts correspond au modèle théorique sans le fond parasite lié au laser, mais avec tous les autres paramètres identiques, ce qui permet de se rendre compte du rôle important du fond parasite dans la mesure. À haute puissance, on voit apparaître les oscillations

^{*} Ce retard maximal correspond à une résolution spectrale limitée à 400 MHz soit 1,7 µeV.

[†] Pour faire une mesure de contraste, seuls le minimum et le maximum de la figure d'interférences nous intéressent. Il n'est donc pas forcément nécessaire d'échantillonner les franges : un souséchantillonnage est possible, mais nécessite d'acquérir de nombreux points afin d'avoir une estimation certaine du maximum et du minimum. En pratique, cela rend l'acquisition d'un interférogramme deux à trois fois plus longue et celui-ci peut être affecté de battements entre la fréquence des franges et la fréquence d'échantillonnage.



(a) Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour la boîte B47-9.





FIGURE 3.4 — Mesures de $g^{(1)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. Les points bleus correspondent à la courbe expérimentale, la courbe rouge à un ajustement théorique. La courbe verte pointillée correspond à la courbe théorique en enlevant le fond parasite cohérent, les paramètres étant égaux par ailleurs.

de Rabi, conséquence de l'excitation résonnante. On peut vérifier que leur période correspond bien à $2\pi/\Omega$ où Ω est la pulsation de Rabi, telle que $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. À basse puissance, la période des oscillations augmente, jusqu'à disparaître lorsqu'elles deviennent lentes devant l'amortissement lié à T_1 et T_2 .

Il est intéressant d'observer la naissance d'une composante très longue lorsque la puissance diminue. Cela est surtout visible sur les courbes bleues pointillées, où le fond parasite du laser a été retiré : à haute puissance, la courbe tend vers un contraste nul, tandis qu'à basse puissance, elle semble se rallonger au point de tendre vers une valeur non nulle. Cette composante de très longue cohérence, apparaissant à basse puissance, est due à la diffusion élastique des photons du laser par le système à deux niveaux. Sur les mesures brutes, le fait que le contraste tende vers une valeur non nulle a donc une origine différente suivant la puissance d'excitation : à haute puissance, cela est dû au fait que la part de laser parasite est grande par rapport à l'émission du système à deux niveaux qui sature ; à basse puissance, la diffusion élastique par le système à deux niveaux devient prépondérante.

Les temps T_1 et T_2 sont tirés d'un ajustement théorique à partir de l'expression (3.2.12). Dans la procédure d'ajustement, l'amplitude du laser $\tilde{\alpha}$ est laissée libre pour chaque courbe, mais T_1 et T_2 sont des paramètres joints, dont la valeur est optimisée sur l'ensemble des mesures. On peut donc obtenir une estimation que l'on confrontera aux estimations établies à partir d'autres mesures^{*}. Les temps estimés par cette procédure d'ajustement sont les suivants :

	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0,43 \pm 0,12 \text{ ns}$	$0,9\pm0,2~\mathrm{ns}$
T_2	$0,54\pm0,10~\mathrm{ns}$	$0,75\pm0,05~\mathrm{ns}$

où les incertitudes indiquées sont deux fois l'erreur-type estimée par la procédure d'ajustement.

Fond parasite

La procédure d'ajustement optimise la valeur de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ où $\tilde{\alpha}$ est en unités arbitraires. Si le paramètre $\tilde{\alpha}$ évolue proportionnellement à la racine carrée de l'intensité d'excitation, $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ est donc constant.

Pour évaluer une valeur de $\tilde{\alpha}$ ayant du sens, nous cherchons à la ramener à l'intensité de photoluminescence de la boîte quantique. À basse puissance, loin de la saturation, l'intensité de photoluminescence est proportionnelle à s_0 : d'après l'expression (1.4.31) (p. 36), on a $I_{BQ,BP} = \frac{s_0}{2}$.

^{*} Pour le *T*₁, une mesure directe du temps de vie sous excitation résonnante est normalement possible, ce qui devrait l'établir sans équivoque. Toutefois, à cause de problèmes expérimentaux liés à la stabilité de notre laser impulsionnel Ti:Sa, nous n'arrivons pas toujours à obtenir la mesure du *T*₁ à la résonance. C'est malheureusement le cas pour B47-9, par exemple.

Pour ramener la valeur de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ au champ de photoluminescence, il faut donc multiplier la valeur brute obtenue par le modèle par $\sqrt{2}$. Toutes les valeurs de $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ données par la suite seront ainsi relatives à l'amplitude du champ de photoluminescence à basse puissance.

Dans le cas présent, pour les mesures de la figure 3.4, l'ajustement a été effectué en laissant $\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0}$ libre pour chaque point de mesure. Sa valeur fluctue, mais on évalue en moyenne :

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = 0.4 \pm 0.2$$
 pour QDIII-bis, (3.2.24)

$$\tilde{\alpha}/\sqrt{s_0} = 0.4 \pm 0.2 \text{ pour B47-9.}$$
 (3.2.25)

Ces deux valeurs sont identiques, ce qui est vraisemblablement une coïncidence puisque le fond est assez variable d'un émetteur à l'autre et même d'une mesure à l'autre comme nous le verrons au chapitre 5.

Une valeur de 0,4 signifie qu'à basse puissance (lorsque l'intensité de photoluminescence est proportionnelle à s_0), l'amplitude du champ parasite vaut 40% de l'amplitude du champ de photoluminescence. Cela peut paraître très important mais n'est pas nécessairement significatif car les valeurs établies ici le sont sans considérer la partie imaginaire de $\tilde{\alpha}$ et le modèle a des limites que nous étudierons plus en détails dans le chapitre 5.

Spectres

En utilisant le théorème de Wiener-Khintchine (cf. paragraphe 3.2.4, p. 82), on peut calculer le spectre de photoluminescence à l'aide d'une transformée de Fourier^{*} de $g^{(1)}(\tau)$. Le résultat est présenté sur la figure 3.5, pour plusieurs puissances d'excitation et pour chacune des boîtes étudiées. Notez que sur ces figures le haut de la courbe — la composante fine — est tronqué afin de pouvoir observer les composantes larges d'amplitude plus faible. Les points bleus sont les points expérimentaux, la courbe rouge continue représente l'ajustement de la courbe expérimentale et la courbe verte pointillée est le calcul théorique correspondant sans le fond parasite mais avec tous les autres paramètres identiques.

À haute puissance, le spectre est constitué d'un triplet appelé triplet de Mollow [Mollow 1969] et correspond à l'équivalent spectral des oscillations de Rabi, qui agissent comme une modulation à la pulsation de Rabi Ω de l'amplitude du champ émis par le système à deux niveaux. Le triplet tend toutefois à disparaître au sein de la composante centrale avec la diminution de la puissance d'excitation, ce qui

^{*} Il s'agit d'une transformée de Fourier discrète, opérée sur la mesure après symétrisation de la courbe en prenant le symétrique de la courbe par rapport à $\tau = 0$. Aucun autre traitement n'a été effectué, et le manque de résolution sur le spectre provient du fait que la ligne à retard de l'interféromètre ne permet pas d'aller au-delà de 2,5 ns environ.

correspond à l'allongement de la période des oscillations constaté au paragraphe précédent, et plus précisément lorsque cette période devient longue devant les temps d'amortissement caractéristiques T_1 et T_2 . De plus, comme nous l'avons vu précédemment, la composante centrale très fine correspond à une composante très longue dans le $g^{(1)}(\tau)$ due à la diffusion du laser. Que ce soit la diffusion parasite à haute puissance ou la diffusion élastique sur le système à deux niveaux à basse puissance, ces deux processus aboutissent au même profil spectral. En observant les courbes vertes pointillées qui ne prennent pas en compte le fond parasite, on peut observer la diminution de la composante élastique à haute puissance.



(a) Spectres de photoluminescence pour la boîte B47-9.



(b) Spectres de photoluminescence pour la boîte QDIII-bis.

FIGURE 3.5 — Spectres de photoluminescence pour plusieurs puissances d'excitation, calculés à partir des mesures de $g^{(1)}(\tau)$ de la figure 3.4.

3.3 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$

3.3.1 Lumière dégroupée

Pour rappel, la fonction d'autocorrélation du champ du second ordre $g^{(2)}(\tau)$, s'écrit :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\left\langle E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) \right\rangle}{\left\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t) \right\rangle^2}$$
(3.3.1)

ce que l'on peut réécrire comme l'autocorrélation de l'intensité :

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle : I(t)I(t+\tau) : \rangle}{I^2}$$
(3.3.2)

où la notation :
□ : réordonne les opérateurs suivant l'ordre normal, c'est-à-dire suivant l'expression (3.3.1). Cet ordre est lié au processus de photodétection à deux photons (cf. paragraphe 3.3.5, p. 94).



FIGURE 3.6 — Exemples de distribution des photons pour de la lumière groupée, cohérente et dégroupée, et fonctions d'autocorrélation associées.

En fonction du comportement de cette fonction d'autocorrélation, on peut définir trois catégories statistiques (cf. figure 3.6) [Fox 2006, cf. § 6.5, p. 115–117; MANDEL & WOLF 1995, cf. § 14.7, p. 712] :

- *la lumière groupée*, pour laquelle les photons auront tendance à être plus proches qu'éloignés les uns des autres, ce qui signifie que $g(\tau) < g(0)$;
- la lumière cohérente*, où les photons se répartissent aléatoirement, sans considé-

^{*} Nous définissons ici la lumière cohérente au deuxième ordre uniquement. On parle également de cohérence pour le premier ordre, c'est-à-dire lorsque g⁽¹⁾(τ) = 1, et de cohérence au sens large, c'est-à-dire que g⁽ⁿ⁾(τ) = 1 pour tout n.

ration de proximité avec leurs voisins, ce qui signifie que $g(\tau) = g(0)$;

• *la lumière dégroupée*, pour laquelle les photons auront tendance à être plus éloignés que proches les uns des autres, ce qui signifie que $g(\tau) > g(0)$.

La lumière groupée ou la lumière cohérente peuvent être décrites avec une onde électromagnétique classique, ce n'est pas le cas de la lumière dégroupée qui nécessite le concept du photon, qui ne pourra jamais être absorbé par deux détecteurs différents. De plus, si elles sont intimement liées, nous distinguerons ici ces trois catégories des statistiques poissonnienne, sub-poissonnienne ou sur-poissonnienne, qui ne décrivent pas exactement les mêmes comportements [Zou & MANDEL 1990].

En particulier, pour un mode unique du champ on a $E^{(+)}(t) \propto a e^{i\omega t}$ où *a* est l'opérateur annihilation et ω la pulsation. Si l'on s'intéresse à la valeur de $g^{(2)}(0)$, celle-ci s'écrit :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle a^{\dagger}a^{\dagger}a \, a \rangle}{\langle a^{\dagger}a \rangle^2} \tag{3.3.3}$$

En utilisant le commutateur $[a, a^{\dagger}] = 1$ et l'opérateur nombre $n = a^{\dagger}a$, on a :

$$\langle a^{\dagger}a^{\dagger}a a \rangle = \langle a^{\dagger}(a a^{\dagger} - 1) a \rangle$$

= $\langle n(n-1) \rangle$ (3.3.4)

et de même :

$$\langle a^{\dagger}a \rangle^2 = \langle n \rangle^2$$
 (3.3.5)

Ainsi, pour un mode unique du champ, on a :

$$g^{(2)}(0) = \frac{\langle n(n-1)\rangle}{\langle n\rangle^2}$$
(3.3.6)

Si l'on considère maintenant un état nombre $|n\rangle$, la valeur à $\tau = 0$ de $g^{(2)}(\tau)$ vaut :

$$g^{(2)}(0) = \frac{n(n-1)}{n^2} = 1 - \frac{1}{n}$$
 (3.3.7)

Si *n* vaut 1, $g^{(2)}(0) = 0$; si *n* vaut 2, $g^{(2)}(0) = \frac{1}{2}$. On en déduit que si $g^{(2)}(0) < \frac{1}{2}$, l'état du champ autour de $\tau = 0$ est au moins partiellement un état nombre $|1\rangle$, ce qui est la signature d'une source de photons uniques.

3.3.2 Passage dans le référentiel tournant du laser

Nous utiliserons également l'autocorrélation non-normalisée $G^{(2)}(\tau)$ qui s'écrit :

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) \right\rangle$$
(3.3.8)

On passe du référentiel du laboratoire au référentiel tournant du laser avec la relation (3.1.10). Il vient alors :

$$G^{(2)}(\tau) = \left\langle e^{i\phi_{t_0\to t}} \tilde{E}^{(-)}(t) e^{i\phi_{t_0\to t+\tau}} \tilde{E}^{(-)}(t+\tau) e^{-i\phi_{t_0\to t+\tau}} \tilde{E}^{(+)}(t+\tau) e^{-i\phi_{t_0\to t}} \tilde{E}^{(+)}(t) \right\rangle$$
(3.3.9)

soit finalement :

$$G^{(2)}(\tau) = \tilde{G}^{(2)}(\tau) \tag{3.3.10}$$

Ainsi le passage dans le référentiel tournant du laser n'affecte pas $G^{(2)}(\tau)$.

3.3.3 $g^{(2)}(\tau)$ de l'émission de la boîte seule

Pour le calcul de la fonction de corrélation du deuxième ordre $g^{(2)}(\tau)$, nous allons suivre à nouveau le calcul de la thèse de Hai-Son Nguyen^{*} [NGUYEN 2011, cf. § A.3, p. 185–186]. Le principe utilisé cette fois est de déterminer la probabilité d'émettre un photon à $t + \tau$ sachant qu'un photon a été précédemment émis à t. Plus concrètement il s'agit de déterminer la population de l'état excité à $t + \tau$ sachant que la population est totalement dans l'état fondamental à t:

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\rho_{ee}(\tau)|_{\rho_{gg}(0)=1}}{\rho_{ee}^{(\text{st})}}$$
(3.3.11)

En effectuant le même changement de base que pour le calcul de $g^{(1)}(\tau)$, on peut alors établir :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\eta\tau} \cdot \left[\cos(\nu\tau) + \frac{\eta}{\nu}\sin(\nu\tau)\right]$$
(3.3.12)

où l'on rappelle que :

$$\eta = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{T_1} + \frac{1}{T_2} \right]$$
$$\nu = \sqrt{\Omega^2 - \frac{1}{4} \left[\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right]^2}$$

Il est important de noter que T_1 et T_2 jouent des rôles parfaitement symétriques en ce qui concerne $g^{(2)}(\tau)$. Un ajustement à l'aide de cette formule devra donc être fait en connaissant au moins l'un des deux temps, que l'on pourra extraire d'une mesure directe du temps de vie ou d'une mesure de $g^{(1)}(\tau)$.

En partant de (3.3.12), on peut retrouver les expressions établies dans la littérature [Scully & ZUBAIRY 1997, cf. équation (10.6.4), p. 308; CARMICHAEL & WALLS 1976, cf. équation (12)] pour un système à deux niveaux à la limite radiative, où $\frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2} = \Gamma$:

$$g^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\frac{3}{4}\Gamma\tau} \left[\cos(\nu\tau) + \frac{3\Gamma}{4\nu} \sin(\nu\tau) \right]$$
(3.3.13)

De plus, à basse puissance, $g^{(2)}(\tau)$ ne dépend plus de la puissance d'excitation proportionnelle à Ω^2 . En effet, pour $\Omega \ll \Gamma$, ν se réduit à $\frac{i}{2} \left| \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right| = i\frac{\Gamma}{4}$. L'expression précédente se réduit alors à :

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + e^{-\Gamma\tau} - 2e^{-\Gamma\tau/2}$$
 (3.3.14)

^{*} Ce calcul est inspiré de [PAUL 1982, cf. § VI.A], voir en particulier p. 1093 où le lien entre $g^{(2)}(\tau)$ et les probabilités conditionnelles est expliqué et utilise le théorème de régression quantique.

Une manière alternative de calculer le $g^{(2)}(\tau)$ à basse puissance sera introduite au paragraphe 3.4.1 et permettra de commenter les trois termes de cette expression. On remarquera que même à basse puissance, $g^{(2)}(\tau)$ ne se réduit pas à une simple exponentielle décroissante, son comportement étant différent du cas d'un pompage non-résonnant, par exemple, pour lequel on aurait [MICHLER 2003, cf. § 4 du dernier chapitre, p. 323–326] :

$$g_{\rm NR}^{(2)}(\tau) = 1 - e^{-\tau/t_{\rm d}}$$
 (3.3.15)

où $t_{\rm d} = 1/(\Gamma + W_{\rm p})$ combine le taux d'émission spontanée Γ et le taux de pompage $W_{\rm p}$.

L'allure théorique de $g^{(2)}(\tau)$ pour un système à deux niveaux à la limite radiative a été tracée sur la figure 3.7, en utilisant les expressions (3.3.13) et (3.3.14). Le creux de dégroupement des photons lié au caractère de source de photons uniques d'un système à deux niveaux est clairement visible, avec $g^{(2)}(0) = 0$. À très basse puissance, la largeur du creux est d'environ $5T_1$ et ne dépend pas de la puissance. Lorsque la puissance augmente, les oscillations de Rabi apparaissent et, de ce fait, le creux de dégroupement s'affine. Il faudra garder à l'esprit que, lorsqu'elle sont mesurées, ces courbes sont convoluées par la réponse instrumentale du système de détection, ce qui diminuera fortement l'amplitude des oscillations. De plus, les systèmes étudiés ne sont pas à la limite radiative, ce qui a tendance à retarder l'apparition des oscillations lorsque l'on augmente la puissance d'excitation.



FIGURE 3.7 — Allure théorique de $g^{(2)}(\tau)$ pour un système à deux niveaux à la limite radiative, pour différentes puissances d'excitation.

3.3.4 $g^{(2)}(au)$ en ajoutant un champ laser diffusé

De la même manière qu'au paragraphe 3.2.2, on remplace l'opérateur dipolaire \tilde{S}_{-} du système à deux niveaux dans le référentiel tournant du laser par $\tilde{S}_{-} + \tilde{\alpha}$, où $\tilde{\alpha}$ est une constante complexe correspondant à l'amplitude parasite qui s'ajoute au signal

3.3 Fonction de corrélation du second ordre $g^{(2)}$

émis par la boîte quantique, et cohérent avec lui. Ainsi, $G^{(2)}(\tau)$ s'écrit :

$$G^{(2)}(\tau) \propto \left\langle \left(\tilde{S}_{+}(t) + \tilde{\alpha}^{*}\right) \left(\tilde{S}_{+}(t+\tau) + \tilde{\alpha}^{*}\right) \left(\tilde{S}_{-}(t+\tau) + \tilde{\alpha}\right) \left(\tilde{S}_{-}(t) + \tilde{\alpha}\right) \right\rangle$$
(3.3.16)

Le développement de cette expression donne :

$$G^{(2)}(\tau) \propto G^{(2)}_{\rm QD}(\tau) + 2|\tilde{\alpha}|^2 I_{\rm QD} + |\tilde{\alpha}|^4 + \left[\tilde{\alpha} \left\langle \tilde{S}_+(t) \, \tilde{S}_+(t+\tau) \, \tilde{S}_-(t+\tau) \right\rangle + \tilde{\alpha} \left\langle \tilde{S}_+(t) \, \tilde{S}_+(t+\tau) \, \tilde{S}_-(t) \right\rangle + |\tilde{\alpha}|^2 \tilde{G}^{(1)}(\tau) + \tilde{\alpha}^2 \left\langle \tilde{S}_+(t+\tau) \, \tilde{S}_+(t) \right\rangle + 2\tilde{\alpha} |\tilde{\alpha}|^2 \left\langle \tilde{S}_+(t) \right\rangle + \text{c.c.} \right]$$
(3.3.17)

où $G_{\text{QD}}^{(2)}(\tau)$ désigne la fonction d'autocorrélation de l'intensité en l'absence de champ laser parasite, c'est-à-dire qu'elle répond à l'expression (3.3.12).

On constate que l'expression obtenue est bien plus lourde que (3.2.12) pour $G^{(1)}(\tau)$. Il apparaît des corrélateurs à trois opérateurs tels que $\langle S_+(t) S_+(t+\tau) S_-(t+\tau) \rangle$ et un corrélateur $\langle S_+(t+\tau) S_+(t) \rangle$ avec deux opérateurs tournant dans le même sens. Ces corrélateurs ne pourront être calculés que dans le chapitre 5.

Pour comprendre l'effet de ces termes supplémentaires, la figure 3.8 est une mesure de $g^{(2)}(\tau)$ effectuée à très haute puissance ($s_0 \approx 40$) avec l'interféromètre de HBT exposé au paragraphe suivant. On peut remarquer que, de manière surprenante, le creux lié au dégroupement des photons s'inverse, ce qui est la signature de *groupement* de photons. Ce phénomène est lié au fond laser diffusé et donc à ces termes supplémentaires. Le chapitre 5 développera un modèle plus complet permettant de les calculer et de décrire ainsi le comportement de $g^{(2)}(\tau)$ à toutes les puissances, en présence d'un champ parasite dû à la diffusion élastique du laser d'excitation. Ces termes ont toutefois un effet beaucoup moins important qu'avec $g^{(1)}(\tau)$; pour le moment, nous nous contenterons de négliger le fond parasite en se cantonnant à des puissances suffisamment basses.



FIGURE 3.8 — Mesure de $g^{(2)}(\tau)$ à très haute puissance ($s_0 \approx 40$) avec la boîte QDIII-bis.

3.3.5 Interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss

L'interféromètre de Hanbury-Brown–Twiss (HBT) est un interféromètre en intensité, dans le sens où il mesure les corrélations en intensité entre deux voies provenant ou pas d'une même source [HANBURY BROWN & TWISS 1954, 1956a,b]. Des corrélations sont susceptibles d'apparaître lorsque l'on observe en particulier une source thermique comme une étoile — ce pour quoi cet interféromètre a été conçu au départ — mais il permet aussi d'identifier une source de photons uniques. Le montage que nous utilisons est schématisé sur la figure 3.9. Il est constitué d'une lame séparatrice divisant un faisceau en deux, puis de deux détecteurs connectés à une carte de corrélation.



FIGURE 3.9 — Schéma d'un interféromètre de Hanbury-Brown-Twiss.

Les deux détecteurs et la carte de corrélation nous permettent de connaître quelle est la probabilité de détection jointe d'un photon sur chacun des deux détecteurs, avec un retard τ entre ces deux détections. Autrement dit, la probabilité de détection d'une paire de photons séparés de τ . Le principe de la mesure est expliqué au paragraphe 3.3.6.

Nous suivons ici un raisonnement décrit dans la littérature pour le taux de détection à un détecteur [Scully & ZUBAIRY 1997, cf. § 4.2, p. 111–113; MANDEL & WOLF 1995, cf. § 12.2, p. 573–576], que nous utiliserons ici pour le taux de détection à deux détecteurs.

Appelons $w_2(t, t + \tau)$ le taux de comptage joint des photons aux instants t et $t + \tau$. L'idée est que la probabilité jointe de détecter un photon sur chacun des détecteurs entre les temps t et t + dt sur le premier détecteur et $t + \tau$ et $t + \tau + dt$ sur le second détecteur est proportionnelle à $w_2(t, t + \tau) dt^2$, τ étant positif.

Dans un premier temps, la probabilité par unité de temps d'obtenir l'état final $|f\rangle$ après la détection d'un photon à *t* et à $t + \tau$, à partir de l'état initial $|i\rangle$, est proportionnelle à :

$$w_2(t,t+\tau) = |\langle f|E^{(+)}(t+\tau)E^{(+)}(t)|i\rangle|^2$$
(3.3.18)

Or on cherche à connaître $w_2(t,t+\tau)$ quel que soit l'état final $|f\rangle$. On somme donc

l'expression précédente sur l'ensemble des états finaux possibles :

$$w_2(t,t+\tau) = \sum_f |\langle f|E^{(+)}(t+\tau)E^{(+)}(t)|i\rangle|^2$$
(3.3.19)

$$=\sum_{f} \langle i|E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau)|f\rangle \langle f|E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t)|i\rangle$$
(3.3.20)

$$= \langle i | E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) | i \rangle$$
(3.3.21)

en utilisant la relation de fermeture $\sum_{f} |f\rangle \langle f| = 1$.

De plus, ne connaissant pas précisément l'état $|i\rangle$ pour chaque mesure, nous en réalisons une mesure statistique, ce qui peut être décrit en sommant l'expression précédente sur l'ensemble des états possibles du champ initial, chacun affecté d'une probabilité P_i :

$$w_2(t,t+\tau) = \sum_i P_i \langle i | E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) | i \rangle$$
(3.3.22)

En définissant l'opérateur densité du champ $\rho = \sum_i P_i |i\rangle \langle i|$, on obtient :

$$w_{2}(t, t+\tau) = \operatorname{Tr}[\rho E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t)]$$
(3.3.23)
$$/ \Gamma^{(-)}(t) \Gamma^{(-)}(t+\tau) \Gamma^{(+)}(t+\tau) \Gamma^{(+)}(t)$$

$$= \left\langle E^{(-)}(t) E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) E^{(+)}(t) \right\rangle$$
(3.3.24)

On reconnaît l'expression (3.1.7) de $G^{(2)}(\tau)$, ainsi :

$$w_2(t,t+\tau) = G^{(2)}(\tau) \tag{3.3.25}$$

Ceci montre que le taux de détection à deux photons séparés de τ , c'est-à-dire ce qui est mesuré avec le montage HBT, est proportionnel à $G^{(2)}(\tau)$.

Pour obtenir la fonction normalisée $g^{(2)}(\tau)$, il faudra normaliser la mesure par rapport aux valeurs de corrélation aux temps longs. En effet, lorsque τ est très grand, les champs en t et en $t + \tau$ ne sont plus corrélés : l'ordre des temps n'importe plus et la covariance entre $E^{(-)}(t) E^{(+)}(t)$ et $E^{(-)}(t + \tau) E^{(+)}(t + \tau)$ est nulle. On a donc :

$$G^{(2)}(\tau \to \infty) = \left\langle E^{(-)}(t) E^{(+)}(t) \right\rangle \left\langle E^{(-)}(t+\tau) E^{(+)}(t+\tau) \right\rangle = G^{(1)}(0)^2 \quad (3.3.26)$$

Ainsi, $g^{(2)}(\tau \to \infty) = 1$. En normalisant $G^{(2)}(\tau)$ aux temps longs, on obtient $g^{(2)}(\tau)$.

3.3.6 Comment se construit une mesure de corrélation de photons?

Les détecteurs de photons émettent une impulsion TTL lorsqu'ils détectent un photon. Nous admettrons donc que détecter une impulsion TTL au niveau de la carte de corrélations correspond à détecter un photon sur le détecteur.

La carte de corrélation a deux entrées : une entrée START qui permet de déclencher un chronomètre, et une entrée STOP qui permet d'arrêter le chronomètre. Le temps mesuré entre la détection START et détection STOP est ensuite enregistré. Nous appellerons ce temps « retard », car il correspond au retard de la détection STOP par rapport à la détection START.

Il est également important de comprendre que la mesure d'un retard est associé à une *paire* de photons START-STOP. Une session de mesure consiste à enregistrer les retards associés à toutes les paires de photons START-STOP détectées. Pour finalement construire la courbe de corrélation, on trace l'histogramme de ces retards.



(a) Pour construire une mesure de corrélation, on mesure les retards entre chaque paire de photon...



(b) ...puis on construit un histogramme de ces retards. Ici, on voit l'évolution d'une mesure au fur et à mesure de l'intégration.

FIGURE 3.10 — Principe général d'une mesure de corrélation de photons.

La figure 3.10a explique le principe de mesure d'un retard τ . Les flèches correspondent à des axes temporels et les points noirs marquent la détection d'un photon sur la voie START ou sur la voie STOP. Un retard nul correspond à la détection simultanée de photons sur START et STOP. A priori, on ne peut pas mesurer de retard négatif sachant qu'un événement détecté sur START doit obligatoirement précéder un événement STOP. Cependant, l'utilisation de câbles très longs pour relier le détecteur STOP à la carte de corrélation permet de décaler l'instant de détection simultanée ($\tau = 0$) d'un temps correspondant à la différence de longueur des câbles, et ainsi de détecter un événement STOP correspondant à un photon ayant été absorbé *avant* celui qui correspond à l'événement START. Cela permet de mesurer un retard

 $\tau < 0.$

La figure 3.10b montre de manière qualitative comment évolue l'histogramme de la mesure de corrélation lorsque l'on augmente le temps d'intégration, ce qui revient à intégrer plus de retards entre des paires de photons START-STOP. On remarquera l'allure caractéristique de cette mesure, qui présente un creux autour du retard nul. Cela signifie que la probabilité de détecter un photon STOP sachant que l'on détecte un photon START au même instant est très faible : il s'agit de la mesure de corrélation de photons pour une source de photons uniques.

Carte de corrélation

Pour effectuer les mesures de corrélation, nous utilisons une carte Becker & Hickl (BH) SPC-630. Il s'agit d'une carte à placer directement dans un ordinateur. Elle possède deux entrées appelées CFD et SYNC, respectivement correspondant à START et à STOP.

Le principe grossier de fonctionnement est qu'une rampe de tension est déclenchée à la réception d'une impulsion sur CFD, puis la valeur de la tension est lue avec un convertisseur analogique-numérique (ADC, *analog-digital converter*) à la réception d'une impulsion sur SYNC.

Cette carte permet de faire des corrélations sur des fenêtres entre 50 ns et 2 µs. Elle a une résolution minimale de 7 ps sur l'entrée CFD, bien en-dessous de la résolution temporelle des détecteurs, qui sera de 50 ps pour les plus rapides. Suivant la configuration, elle peut réaliser des histogrammes sur 256, 1024 ou 4096 canaux — c'est-à-dire des classes d'histogramme — sur une mémoire de 16 bits par canal, ce qui signifie que la carte sature à 2¹⁶ paires comptées sur un canal.

Un mode *time-tag**, appelé FIFO pour cette carte du fait de l'utilisation d'un registre *first in–first out*, est également disponible, mais la résolution sera limitée à 256 canaux sur 50 ns. Nous n'avons jamais utilisé ce mode car il est surtout utile si le signal est très fort, ou pour effectuer des corrélations sur des temps très longs.

Résolution temporelle du système de détection

La mesure de corrélation est affectée par la résolution temporelle du système de détection, a priori limitée par deux facteurs :

- la gigue des détecteurs;
- la résolution temporelle de la carte de corrélation.

^{*} Le mode *time-tag* consiste à enregistrer les valeurs absolues des temps d'arrivée de chaque photon sur chaque voie, ce qui permet de faire des corrélations entre toutes les paires de photon et pas seulement la première détectée. Cela est surtout intéressant lorsque le taux de coïncidences dans la fenêtre de mesure est élevé et que la coïncidence à la première paire a lieu sur un temps caractéristique court devant la largeur de la fenêtre de mesure.

Nous avons vu que la carte de corrélation est extrêmement précise avec une résolution de quelques picosecondes, alors que les détecteurs ont une résolution de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes. La résolution globale du système est donc déterminée surtout par les détecteurs.

Quelle que soit la source limitant la résolution du système de détection, il est assez simple de mesurer sa réponse impulsionnelle. Pour cela, on utilise l'interféromètre de HBT avec des impulsions laser issues du laser Ti:Sa, qui sont très courtes (quelques picosecondes) devant la résolution des détecteurs (1 ns environ). On mesure ainsi la réponse impulsionnelle instrumentale (IRF, *instrument response function*). Sa largeur est donc caractéristique de la résolution temporelle du système de mesure de corrélation. Une mesure d'IRF est représentée sur la figure 3.11, en utilisant les deux APD Perkin-Elmer SPCM-AQRH-16 (cf. paragraphe 2.1.2, p. 47).

Pour prendre en compte l'IRF dans la confrontation entre théorie et mesures, on pourrait déconvoluer la mesure, mais cela est une opération numérique très instable et peu pratique. La méthode généralement utilisée est plutôt de convoluer la courbe théorique avec l'IRF, puis de comparer la courbe théorique ainsi convoluée et la mesure.



FIGURE 3.11 — Réponse impulsionnelle (IRF, pour *Instrument Response Function*) du système de mesure de corrélation de photons, pour un pas en temps correspondant à 1024 points sur une fenêtre de 120 ns. Cette courbe est une densité de probabilité, la somme de ses points étant égale à 1. Sa largeur à mi-hauteur vaut 1,0 ns.

3.3.7 Mesures de $g^{(2)}(\tau)$

La figure 3.12 présente des mesures de $g^{(2)}(\tau)$ à différentes puissances d'excitation, pour les boîtes B47-9 et QDIII-bis. On peut y voir les courbes de corrélation mesurées, dont le seul traitement a été de les normaliser. La courbe rouge est une courbe théorique calculée à partir du modèle du paragraphe 3.3.3 (p. 91) et la formule (3.3.12), puis convoluée avec la réponse impulsionnelle (IRF) du système de détection, qui est représentée dans le graphe en haut à gauche de la figure 3.12a.

Sur toutes les courbes, on observe le creux à $\tau = 0$ lié au dégroupement des photons, avec $g^{(2)}(0) < 0.5$ sur la majorité des courbes, signature d'une source de photons uniques. À haute puissance, on peut distinguer un rebond de chaque côté du creux central, correspondant aux oscillations de Rabi que nous avions déjà observées sur les mesures de $g^{(1)}(\tau)$. De plus, lorsque la puissance d'excitation est élevée, le creux est plus étroit et moins profond : pour B47-9 (courbes (a)), à $s_0 = 7.34$ la largeur à mi-hauteur vaut 1 ns et $g^{(2)}(0) = 0.54$. Le creux s'élargit tout en s'approfondissant lorsque l'on diminue la puissance : à $s_0 = 0.22$, la largeur à mi-hauteur vaut 2,6 ns et $g^{(2)}(0) = 0.14$. De même pour QDIII-bis (courbes (b)), la largeur à mi-hauteur passe de 0.9 à 1.8 ns et $g^{(2)}(0)$ allant de 0.79 à 0.27 lorsque la puissance est réduite de $s_0 = 8.6$ à 0.40.

À basse puissance, l'expression théorique (3.3.12) de $g^{(2)}(\tau)$ ne dépend plus de la puissance, ν tendant vers $\frac{i}{2} \left| \frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right|$, et la largeur de la courbe se trouve déterminée uniquement par T_1 et T_2 . Lorsque la puissance est plus élevée, les termes oscillants liés aux oscillations de Rabi deviennent plus rapides que les temps d'amortissement T_1 et T_2 . Cela a pour effet de rendre le creux plus étroit et la convolution par la réponse du système de mesure réduit sa profondeur.

Les mesures présentées sur la figure 3.12 sont effectuées à des puissances d'excitation assez basses pour maintenir un niveau de fond parasite négligeable devant l'intensité de photoluminescence de la boîte. On utilise donc l'expression (3.3.12) de $g^{(2)}(\tau)$ pour estimer l'un des deux temps T_1 ou T_2 . D'après les considérations du paragraphe 3.3.3, T_1 et T_2 jouent un rôle symétrique dans l'expression théorique de $g^{(2)}(\tau)$. Par conséquent, on utilise les valeurs estimées grâce aux mesures de $g^{(1)}(\tau)$ afin de fixer T_1 ou T_2 , en choisissant le temps le plus précisément évalué. On laisse l'autre libre. Ceci mène au résultat suivant :

	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0,37\pm0,04~\mathrm{ns}$	$0,82\pm0,03~\mathrm{ns}$
<i>T</i> ₂	0,54 ns (fixé)	0,75 ns (fixé)

où les incertitudes indiquées sont égales à 2σ avec σ l'erreur-type estimée par la procédure d'ajustement.

Pour rappel, les valeurs de T_1 estimées avec les mesures de $g^{(1)}(\tau)$ sont 0,43 ± 0,12 ns pour QDIII-bis et 0,9 ± 0,2 ns pour B47-9, qui sont donc compatibles avec les valeurs établies ici.

Il faut préciser deux points :

 les incertitudes présentées ici ne tiennent pas compte des incertitudes sur les autres paramètres du g⁽²⁾(τ), en particulier de l'incertitude sur T₂ qui est donc forcément sous-estimée. Une manière d'estimer l'impact de cette incertitude est de changer la valeur fixée de T₂ d'une extrême à l'autre et de recommencer l'ajustement. On constate alors une variation de T₁ de ±0,05 ns



(a) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte B47-9. L'IRF du système de détection est représentée sur le graphe en haut à gauche, et permet d'avoir une idée de l'effet du système de détection sur la mesure.



(b) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour la boîte QDIII-bis.

FIGURE 3.12 — Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ pour différentes puissances d'excitation $s_0 = \Omega^2 T_1 T_2$. Les points bleus correspondent à la courbe expérimentale, la courbe rouge à un ajustement théorique. pour les mesures sur les deux boîtes;

on fait ici l'hypothèse que les sessions de mesures de g⁽¹⁾(τ) et de g⁽²⁾(τ) sont effectuées dans les mêmes conditions, même si elles n'ont pas eu lieu le même jour. En effet, il peut arriver que le refroidissement ne se passe pas de manière identique d'un jour à l'autre et change l'environnement électrostatique de la boîte. Ici, cependant, la qualité des ajustements et la compatibilité des valeurs des paramètres vient appuyer cette hypothèse.

Résultats finaux sur les temps T_1 et T_2

Les estimations finales pour T_1 et T_2 sont les suivantes :

	QDIII-bis	B47-9
T_1	$0,37\pm0,05~\mathrm{ns}$	$0,82\pm0,05~\mathrm{ns}$
T_2	0,54 \pm 0,10 ns	$0,75\pm0,05~\mathrm{ns}$

Les incertitudes sont purement liées ici à la procédure d'ajustement en maintenant tous les paramètres fixés, à l'exception de T_1 et T_2 , ainsi que, selon les cas, du fond parasite provenant du laser d'excitation et du coefficient liant Ω^2 à la référence de puissance d'excitation (mesurée au puissancemètre). Les incertitudes expérimentales, par exemple sur la mesure de la puissance d'excitation, ne sont pas prises en compte.

Il est intéressant d'évaluer à quel point ces émetteurs se trouvent proches de la limite radiative, où l'on a $T_2 = 2 T_1$. On utilise pour cela le rapport $\frac{T_2}{2T_1}$, qui sera donc au plus égal à 1, et qui vaut 0.73 ± 0.17 dans le cas de QDIII-bis et 0.46 ± 0.04 . La boîte quantique QDIII-bis est donc bien plus près de la limite radiative que B47-9.

3.4 Effets d'un filtrage spectral sur le dégroupement des photons

3.4.1 Diffusion des photons du laser par le système à deux niveaux

Nous avons vu au paragraphe 1.4.6 (p. 38) que l'intensité émise par la boîte quantique peut se diviser en deux composantes : une composante cohérente liée à la diffusion élastique, et une composante incohérente liée à la diffusion inélastique. La composante cohérente est liée à l'émission du dipôle moyen et s'apparente à celle d'un dipôle classique piloté par le champ du laser d'excitation, qui a donc le même profil spectral que le laser ; la composante incohérente est liée à la fluctuation du dipôle autour du dipôle moyen, conduisant à une raie spectrale ayant une largeur intrinsèque liée au temps de vie de fluorescence, comme lorsque le système est pompé de manière non-résonnante. À basse puissance, nous avons vu également que la composante cohérente devient prépondérante sur la composante incohérente. Il est alors légitime de se demander si la boîte est toujours un bon émetteur de photons uniques à basse puissance. Le laser étant diffusé élastiquement, on peut penser au premier abord que les photons diffusés devraient se comporter de la même manière que si l'on observait directement le laser. En particulier, les photons devraient suivre une statistique poissonnienne. Pourtant, l'expérience démontre le contraire : à basse puissance, les mesures de dégroupement des photons de la figure 3.12 sont sans équivoque : la source reste un bon émetteur de photons uniques, même pour un rapport $I_{\text{él}}/I_{\text{inél}} = 55\%$ comme c'est le cas pour QDIII-bis avec $s_0 = 0,4$, où $g^{(2)}(0) = 0,25$.

Une manière de voir les choses est de considérer l'émission résonnante comme de la diffusion des photons sur la transition, et de voir comment s'ajoutent les amplitudes de diffusion, une technique utilisée^{*} dans [DALIBARD & REYNAUD 1983]. Ce sont des processus non-linéaires de diffusion à plusieurs photons qui sont alors responsables de l'élargissement spectral, c'est-à-dire de la composante incohérente. De manière générale, on définit un état initial $|\psi_i\rangle$ comme le système à deux niveaux en présence de photons du laser d'excitation, avant diffusion. Après diffusion des photons du laser par le système à deux niveaux, le système se trouvera dans l'état final $|\psi_f\rangle$. Ces deux états sont liés par la matrice *S* décrivant le processus de collision :

$$|\psi_f\rangle = S|\psi_i\rangle \tag{3.4.1}$$

L'état initial est constitué du système à deux niveaux dans l'état fondamental $|g\rangle$ et de *N* photons dans le mode du laser à la longueur d'onde λ_L :

$$|\psi_i\rangle = |g, N\lambda_{\rm L}\rangle \tag{3.4.2}$$

Dans le régime de diffusion Rayleigh, c'est-à-dire à une puissance d'excitation très faible devant la puissance de saturation du système à deux niveaux, on a $\Omega \ll \Gamma = \frac{1}{T_1} = \frac{2}{T_2}$ (on se place à la limite radiative pour simplifier les expressions), l'état final peut être développé en se restreignant à l'ordre 2 :

$$|\psi_{f}\rangle = |g, N\lambda_{L}\rangle + \sum_{\lambda} S_{1}(\lambda)|g, (N-1)\lambda_{L}, \lambda\rangle + \sum_{(\lambda,\lambda')} S_{2}(\lambda,\lambda')|g, (N-2)\lambda_{L}, \lambda, \lambda'\rangle$$
(3.4.3)

où $S_1(\lambda)$ et $S_2(\lambda, \lambda')$ sont les éléments de matrice de *S* correspondant respectivement à la diffusion d'un photon et de deux photons par le système à deux niveaux. On peut représenter $|\psi_f\rangle$ sous la forme de diagrammes, comme sur la figure 3.13, où les termes (o), (1) et (2) sont respectivement le premier, le deuxième et le troisième terme de la décomposition (3.4.3).

Ces processus peuvent être représentés de manière plus conventionnelle sur la figure 3.14, permettant de mieux comprendre ce qu'ils signifient d'un point de

^{*} Le calcul présenté dans cet article reprend celui qui est détaillé dans [DALIBARD 1981], où l'on pourra en particulier se référer à la discussion physique des pages 99 et 100.



FIGURE 3.13 — Représentation diagrammatique de l'état après diffusion des photons du laser sur le système à deux niveaux, présentant les deux premiers ordres des processus de diffusion en jeu.

vue énergétique. L'ordre (o), non représenté, correspond à 0 photon diffusé, l'ordre (1) correspond à la diffusion d'un photon à λ_L en un photon à λ , et l'ordre (2) correspond à deux photons à λ_L diffusés en deux photons à λ et λ' respectivement. La conservation de l'énergie amènera à $\omega_{\lambda} = \omega_L$ pour l'ordre (1) et $\omega_{\lambda} + \omega_{\lambda'} = 2\omega_L$ pour l'ordre (2).



- (a) Processus du premier ordre.
- (b) Processus du deuxième ordre.

FIGURE 3.14 — Diagrammes d'énergie représentant les deux premiers ordres du processus de diffusion des photons du laser à ω_L sur le système à deux niveaux.

Sans détailler les calculs que l'on retrouvera dans [*ibid*.] et [DALIBARD 1981], dans la limite d'une faible excitation ($\Omega \ll \Gamma$), ce raisonnement mène à l'expression de $P(\tau)$, qui est, pour une paire de photon donnée, la probabilité de détecter le second photon à τ sachant le premier détecté à 0. Cette probabilité est une manière d'estimer $G^{(2)}(\tau)$ comme nous l'avons vu au paragraphe 3.3.3 qui se repose sur [PAUL 1982, cf. § VI.A]. On obtient $P(\tau)$ sous la forme du module carré de la transformée de Fourier du spectre de diffusion à deux photons $S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'})$ (qui correspond à l'élément de matrice S_2 défini précédemment) :

$$P(\tau) \propto \left| \iint d\omega_{\lambda} d\omega_{\lambda'} S_2(\omega_{\lambda}, \omega_{\lambda'}) e^{-i\omega_{\lambda}\tau_A} e^{-i\omega_{\lambda'}\tau_B} \right|^2$$
(3.4.4)





(a) Émission de deux photons Rayleigh (diffusion élastique).

(b) Diffusion inélastique.

FIGURE 3.15 — Processus résonnants de diffusion du deuxième ordre.

où τ_A et τ_B sont les instants d'émission des photons détectés sur les détecteurs A et B respectivement ($\tau = \tau_B - \tau_A$), et où $S_2(\omega_\lambda, \omega_{\lambda'})$ s'exprime :

$$S_{2}(\omega_{\lambda},\omega_{\lambda'}) \propto 2i\pi \cdot \delta(\omega_{\lambda}-\omega_{L}) \,\delta(\omega_{\lambda'}-\omega_{L}) \\ + \,\delta(\omega_{\lambda}+\omega_{\lambda'}-2\omega_{L}) \left[\frac{1}{\omega_{\lambda}-\omega_{0}+i\frac{\Gamma}{2}}+\frac{1}{\omega_{\lambda'}-\omega_{0}+i\frac{\Gamma}{2}}\right] \quad (3.4.5)$$

On peut reconnaître dans cette expression deux termes correspondant aux deux processus résonnants de diffusion à deux photons, tous les deux représentés sur la figure 3.15 : le premier terme correspond à la diffusion de deux photons Ray-leigh (diffusion élastique de deux photons, diagramme (a)), et le deuxième terme correspond à la diffusion d'un photon à $2\omega_L - \omega_0$ et d'un photon à ω_0 (diffusion inélastique de deux photons, diagramme (b)).

En réinjectant l'expression de S_2 dans l'intégrale de (3.4.4), on obtient (pour $\tau > 0$) :

$$P(\tau) \propto \left| e^{-i\omega_{\rm L}\tau} - e^{-i\omega_0\tau} e^{-\Gamma\tau/2} \right|^2$$
(3.4.6)

soit, en développant l'expression :

$$P(\tau) \propto 1 + e^{-\Gamma \tau} - 2\cos((\omega_{\rm L} - \omega_0)\tau) e^{-\Gamma \tau/2}$$
 (3.4.7)

et pour un désaccord nul ($\omega_{\rm L} = \omega_0$) :

$$P(\tau) \propto 1 + e^{-\Gamma \tau} - 2e^{-\Gamma \tau/2}$$
 (3.4.8)

Ce résultat est identique à l'expression (3.3.14) de $g^{(2)}(\tau)$, établie dans la limite des très faibles puissances, avec le dégroupement des photons caractéristique d'une source de photons uniques. On remarquera que ce calcul montre que le premier terme provient de la composante Rayleigh, le deuxième terme de la composante incohérente et le dernier terme est le terme croisé qui apparaît lorsque l'on développe le module carré de l'expression (3.4.6). C'est ce dernier terme qui est responsable du dégroupement des photons, ce qui est très intéressant : il est issu des interférences entre la composante Rayleigh et la composante incohérente. Dans cette perspective, donc, si l'on enlève l'une des deux contributions, le terme d'interférences et donc le dégroupement des photons disparaissent.

Filtrage spectral de la fluorescence de résonance et effet sur le dégroupement

L'un des avantages de cette approche est qu'elle établit le spectre de diffusion à deux photons avec la composante Rayleigh et les composantes inélastiques aisément identifiables. On peut donc s'intéresser à l'effet d'un filtrage spectral de la fluorescence de résonance sur le dégroupement des photons. On définit $f_A(\omega)$ et $f_B(\omega)$ les amplitudes de filtrage associées aux filtres placés devant les détecteurs A et B du montage HBT. Pour prendre en compte les filtres, l'expression (3.4.4) devient :

$$P(\tau) \propto \left| \iint d\omega_{\lambda} d\omega_{\lambda'} S_2(\omega_{\lambda}, \omega_{\lambda'}) f_{\rm A}(\omega_{\lambda}) f_{\rm B}(\omega_{\lambda'}) \, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\lambda}\tau_{\rm A}} \, \mathrm{e}^{-\mathrm{i}\omega_{\lambda'}\tau_{\rm B}} \right|^2 \tag{3.4.9}$$

Si l'on choisit correctement les filtres, on peut évaluer l'effet de la suppression de la composante inélastique de S_2 , c'est-à-dire du second terme de (3.4.5), qui se réduit alors à :

$$S_2(\omega_{\lambda}, \omega_{\lambda'}) \propto 2i\pi \cdot \delta(\omega_{\lambda} - \omega_{L}) \,\delta(\omega_{\lambda'} - \omega_{L}) \tag{3.4.10}$$

On obtient alors $P(\tau) \propto 1$, ce qui signifie que l'on retrouve $g^{(2)}(\tau) = 1$, c'est-à-dire la statistique poissonnienne qui gouverne le laser d'excitation.

Si l'on supprime maintenant la composante élastique de S_2 , c'est-à-dire le premier terme, on obtient $P(\tau) \propto e^{-\Gamma \tau}$. Ce résultat ne considère toutefois qu'une seule paire de photons issue d'un même processus de diffusion du deuxième ordre tel que celui de la figure 3.15b. Avec une source continue réaliste, au bout d'un certain retard τ , aucune corrélation n'est attendue entre les deux photons détectés et on s'attend à une statistique poissonnienne aux temps longs. $P(\tau)$ ne correspond donc pas toujours à une mesure réelle de $G^{(2)}(\tau)$ d'un faisceau de photons provenant d'une source continue. Une piste pour obtenir une estimation correcte de $G^{(2)}(\tau)$ serait de prendre en compte des processus de diffusion d'ordres supérieurs (en s'inspirant par exemple de [ZAIDI 1981]).

Ce résultat est néanmoins intéressant car il prévoit un groupement des photons de la paire de photons émise par diffusion inélastique suivant le processus de la figure 3.15b, avec un temps caractéristique qui est le temps de vie $1/\Gamma$. En supprimant la composante Rayleigh, on devrait donc s'attendre à observer du groupement des photons autour de $\tau = 0$ au lieu du dégroupement attendu pour une source de photons uniques.

3.4.2 Mesures à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot

Dans ce paragraphe, nous utiliserons l'interféromètre de Fabry–Pérot présenté au paragraphe 2.3.3 (p. 65) de deux manières : tout d'abord comme spectromètre, afin de faire un spectre de photoluminescence en balayant la longueur de la cavité, puis comme filtre passe-bande fin, où la longueur de cavité reste fixe, ce qui permettra de ne conserver que la composante fine du spectre de photoluminescence correspondant à la diffusion élastique.

3 Autocorrélation en champ et en intensité

La figure 3.16 présente des mesures de spectre de photoluminescence résonnante mesurés à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot, effectuées sur la boîte QDIIIbis. À basse puissance, seule la composante centrale est visible, avec un pied large correspondant à la diffusion inélastique et une raie fine correspondant à la diffusion élastique. Lorsque la puissance augmente, on peut voir apparaître le triplet de Mollow, en particulier la raie à basse énergie, signalée par une flèche sur la mesure à haute puissance. La raie à haute énergie est masquée par l'intervalle accessible par notre système de mesure — en l'occurence la source de tension contrôlant la longueur de cavité.



FIGURE 3.16 — Spectres de photoluminescence résonnante mesurés à l'aide de l'interféromètre de Fabry–Pérot, pour différentes puissances d'excitation. Les mesures pour chaque puissance d'excitation ont été décalées verticalement de 200 photons/s pour chaque courbe — les zéros ont été représentés en pointillés. La puissance d'excitation est indiquée sur la droite sous la forme du paramètre de saturation.

L'idée dans ce qui suit est d'effectuer des mesures de corrélation à l'aide d'un interféromètre de HBT sur la composante élastique du spectre de photoluminescence à basse puissance d'une part et sur la composante inélastique d'autre part. Pour ce faire, nous ajustons la longueur de la cavité Fabry–Pérot de manière à ce qu'elle transmette la composante élastique. La largeur de la fonction de transmission de la cavité est de l'ordre de 10 MHz. La largeur typique de la raie issue de la diffusion inélastique est de 1 GHz, tandis que la largeur spectrale du laser est de l'ordre de 100 kHz. Cela signifie que le filtrage par la cavité n'a essentiellement pas d'incidence sur la composante élastique, mais atténue considérablement la composante inélastique, ne transmettant que 1% de la largeur de la raie. Dans l'idéal, la cavité Fabry–Pérot résonnante avec la composante élastique permet donc de ne récupérer

que celle-ci en transmission et d'accéder au complémentaire — c'est-à-dire à la composante inélastique — en réflexion. Un schéma de principe de ce montage est représenté sur la figure 3.17. En pratique, si la composante élastique est bien la seule transmise par la cavité, ce n'est pas le cas en réflexion : seuls 30% des photons résonnants avec la cavité sont transmis, le reste étant réfléchi. Ainsi la composante élastique est pour l'essentiel réfléchie avec la composante inélastique et l'effet de filtrage en réflexion est faible.



FIGURE 3.17 — Schéma de principe du montage de filtrage de la composante élastique à l'aide du Fabry–Pérot. En transmission, on obtient la raie de diffusion élastique; en réflexion, on obtient le spectre uniquement lié à la diffusion inélastique.

De plus, étant donné que la cavité n'est pas asservie sur la raie du laser, il y a de fortes dérives qui rendent la mesure délicate : les temps d'intégration pour $\sim 10^4$ photons/s sur chaque détecteur sont de l'ordre de l'heure, et la cavité reste résonnante avec le laser sur un temps de l'ordre de 10 s. Sans implémenter d'asservissement, il faut donc réoptimiser la cavité à la main toutes les 10 s, ce qui est loin d'être idéal pour le confort de l'expérimentateur et pour la qualité de la mesure.

La figure 3.18a correspond à une mesure de corrélation effectuée avec un interféromètre de HBT sur la composante transmise par la cavité, c'est-à-dire la composante élastique. Il s'agit de la courbe rouge dont les points sont des cercles pleins (« avec filtrage »). À titre de comparaison, la mesure a été effectuée dans les mêmes conditions en enlevant la cavité Fabry–Pérot devant l'interféromètre de HBT ; le résultat est la courbe bleue dont les points sont des cercles vides (« sans filtrage »). On constate que le dégroupement visible sur la mesure sans cavité disparaît lorsque l'on ne conserve que la composante élastique. Le filtrage détruit donc le dégroupement des photons et on retrouve la cohérence d'ordre 2 propre au champ d'excitation du laser $(g^{(2)}(\tau) = 1$ pour tout τ).

La figure 3.18b correspond aux mêmes mesures de corrélation, mais la mesure avec filtrage est effectuée sur la lumière réfléchie sur la cavité Fabry–Pérot. Si la cavité est d'assez bonne qualité, la lumière réfléchie comporte toutes les composantes spectrales incidentes sur la cavité, à l'exception de celles qui sont transmises. On observe sur les mesures qu'il n'y a pas de différence visible entre les deux mesures. Cela ne signifie pas qu'il n'y a aucun effet : en réalité, la transmission à la résonance de la cavité que nous utilisons culmine à 30%, ce qui signifie que 70% de la composante élastique est réfléchie également vers l'interféromètre de HBT. S'il y a un effet, il est donc très probablement caché du fait qu'on est très loin des conditions expérimentales idéales. On ne peut donc pas conclure quant à l'effet du filtrage dans le cas où l'on observe la diffusion inélastique uniquement.



(a) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ en transmission avec et sans la cavité Fabry-Pérot, pour une puissance de l'ordre de la puissance de saturation.

(b) Mesures de $g^{(2)}(\tau)$ en réflexion sur la cavité Fabry-Pérot et sans cavité, pour une puissance inférieure à la puissance de saturation.

FIGURE 3.18 — Mesures de corrélations en intensité en utilisant une cavité Fabry-Pérot pour rejeter ou ne conserver que la composante élastique du spectre de photolumines-cence résonnante.

On insistera sur le fait que la bande passante du filtre est plus large que la largeur de la raie élastique de deux ordres de grandeur et plus étroite que la largeur de raie inélastique de deux ordres de grandeur également. Pour les mesures en transmission de la figure 3.18a, le filtrage n'affecte donc pas la composante élastique tout en supprimant l'essentiel de la composante inélastique. La perte du dégroupement est donc liée à la suppression des mécanismes de diffusion inélastique du point de vue du système de détection : ces mécanismes sont essentiels à l'observation du dégroupement, même lorsque la puissance est très faible et que la grande majorité des photons sont émis par diffusion élastique.

Conclusion du chapitre

Après avoir défini les fonctions de corrélation du champ à partir du formalisme de Roy J. Glauber [GLAUBER 1963], nous avons modélisé et mesuré les fonctions $g^{(1)}(\tau)$ et $g^{(2)}(\tau)$ pour le champ émis par un système à deux niveaux comme une boîte quantique.

La mesure de $g^{(1)}(\tau)$ est effectuée en mesurant le contraste des franges d'interférences produites à la sortie d'un interféromètre de Michelson, ce contraste étant directement proportionnel à $|g^{(1)}(\tau)|$. Nous avons pu voir dans les résultats qu'un fond parasite non négligeable était présent et qu'il était indispensable d'ajouter ce fond parasite au modèle pour pouvoir reproduire les mesures. À basse puissance d'excitation, la montée d'une composante très cohérente est caractéristique du régime de diffusion Rayleigh, dans lequel la majorité des photons de photoluminescence sont des photons du laser d'excitation diffusés élastiquement.

La mesure de $g^{(2)}(\tau)$ est quant à elle effectuée en utilisant un interféromètre de Hanbury–Brown et Twiss. On peut ainsi estimer la statistique du faisceau analysé et, en particulier, établir si la source est une source de photons uniques, auquel cas $g^{(2)}(0) < 0,5$. Une étude en puissance d'excitation permet d'établir sans équivoque que les boîtes quantiques étudiées sont des sources de photons uniques, et ce même à très basse puissance, dans le régime de diffusion Rayleigh, alors qu'une majorité des photons sont issus du laser d'excitation par diffusion élastique.

Pour comprendre comment le dégroupement de photons se maintient dans le régime de diffusion Rayleigh, nous avons vu qu'en filtrant la composante élastique, c'est-à-dire en ne conservant que les photons diffusés élastiquement, le dégroupement disparaissait. Cela tend à confirmer les conclusions du modèle diagrammatique basé sur [DALIBARD & REYNAUD 1983] qui implique que le dégroupement est le fruit des interférences entre la composante Rayleigh et la composante inélastique, et ce dans la limite des basses puissances d'excitation.

Enfin, rappelons que les mesures de $g^{(2)}(\tau)$ sont fortement affectées par la résolution temporelle des détecteurs et subissent une convolution par la réponse instrumentale, ce qui peut dégrader fortement la valeur du creux de dégroupement à $\tau = 0$. Ce problème sera particulièrement important au chapitre 4 pour les mesures d'interférences à deux photons et leur interprétation.