

**POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**  
affiliée à l'Université de Montréal

**Excitation résonante d'un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe**

**MATHIAS PONT**  
Département de génie physique

Mémoire présenté en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*  
Génie physique

Avril 2020

**POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**

affiliée à l'Université de Montréal

Ce mémoire intitulé :

**Excitation résonante d'un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe**

présenté par **Mathias PONT**

en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

**Alain ROCHEFORT**, président

**Sébastien FRANCOEUR**, membre et directeur de recherche

**Maksim SKOROBOGATIY**, membre

## REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à mon directeur de recherche, professeur Sébastien Francoeur. Je le remercie de m'avoir fait confiance, et de m'avoir donné les moyens de mener des recherches passionnantes. Il m'a permis de travailler de manière autonome, tout en soutenant mes efforts et en me guidant dans la bonne direction. Je n'aurais pas pu imaginer une meilleure supervision.

Je remercie Anne-Laurence Phaneuf-l'Heureux pour l'aide qu'elle m'a apportée, pour sa patience et sa pédagogie lorsqu'il a fallu m'apprendre à aligner le montage expérimental.

Un grand merci à Léonard Schue pour m'avoir supporté au quotidien au laboratoire. Enfin, je remercie les membres de mon groupe de recherche pour leur soutien.

## RÉSUMÉ

Les technologies NISQ (noisy intermediate-scale quantum, ou quantiques d'échelle intermédiaire bruitées), précurseurs des ordinateurs quantiques, ont déjà réussi pour certaines procédures spécifiques à dépasser les capacités de calculs d'un ordinateur classique. Le développement d'un ordinateur capable d'implémenter n'importe quel algorithme quantique reste cependant un problème ouvert. Le développement d'un système capable de stocker, de manipuler et de retranscrire l'information quantique est à l'étude dans les laboratoires du monde entier.

Le réseau permettant de relier entre eux des ordinateurs quantiques à grande distance pourrait utiliser le photon comme support de l'information quantique. Les interfaces capables de faire le lien entre un qubit stationnaire, c'est-à-dire l'information quantique au sein de l'ordinateur, et un photon doivent allier un fort couplage avec la lumière à un faible élargissement inhomogène.

La molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  est un centre isoélectronique. Ces émetteurs quantiques jusqu'à maintenant peu étudiés allient le faible élargissement inhomogène des défauts atomiques comme les centres NV dans le diamant, au fort moment dipolaire des structures nanoscopiques comme les boîtes quantiques. On a démontré que l'initialisation d'un trou lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  est réalisée en 150 ps avec une fidélité de 98.5%.

Dans ce mémoire on fait état d'un obstacle dans la démonstration du contrôle cohérent d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ . L'excitation résonante de l'exciton lié, pourtant indispensable au contrôle complet de l'état quantique de ce système à deux niveaux, engendre une accumulation de charges isolées dans le voisinage de l'émetteur. Les fluctuations de l'environnement électrostatique de l'exciton entraînent un décalage spectral variable, sous forme de diffusion spectrale, de son énergie de résonance et réduisent fortement le temps de cohérence de l'exciton. Cette observation expérimentale n'a encore jamais été reportée pour un émetteur unique.

Pour contourner ce problème, on propose une solution innovante. On démontre que l'ajout d'un laser non-résonant permet de générer des paires électron-trou qui déchargent l'environnement en permettant la recombinaison radiative des charges isolées. On retrouve alors l'énergie de résonance de l'émetteur et une largeur spectrale comparable à celle attendue dans la limite radiative.

## ABSTRACT

NISQ (noisy intermediate-scale quantum) technologies are the precursors of quantum computers. They have already succeeded in exceeding the computational capacity of a classical computer. However, the development of a computer that could implement any quantum algorithm remains an open problem. The development of a system capable of storing, manipulating and transcribing quantum information is under study in laboratories around the world.

In order to interconnect far away computers, we could use the photon as a medium for quantum information. Interfaces capable of making the link between a stationary qubit and a photon must combine a strong coupling with light with a weak inhomogeneous broadening. The  $\text{Te}_2$  molecule in ZnSe is an isoelectronic center. These quantum emitters combine the weak inhomogeneous widening of atomic defects like NV centers in diamonds, and the high dipole moment of nanoscopic structures like quantum dots. We have shown that the initialization of a hole linked to a molecule of  $\text{Te}_2$  in ZnSe is carried out in 150 ps with a fidelity of 98.5%.

In this master thesis, we first point out an obstacle in the demonstration of the coherent control of an exciton bound to a  $\text{Te}_2$  molecule in ZnSe. The resonant excitation of the bound exciton, however essential for the complete coherent control of the quantum state of this two-level system, generates an accumulation of isolated charges in the vicinity of the emitter. Fluctuations in the electrostatic environment of the exciton cause a sporadic red-shift of its resonance energy. In addition, these fluctuations greatly reduce the coherence time of the exciton.

To circumvent this problem, we show that an additional non-resonant laser, that generates electron-hole pairs, discharges the environment by allowing for the radiative recombination of the isolated charges. The resonance energy of the emitter is restored and we measure a spectral width comparable to that expected in the radiative limit.

## TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS . . . . .	iii
RÉSUMÉ . . . . .	iv
ABSTRACT . . . . .	v
TABLE DES MATIÈRES . . . . .	vi
LISTE DES TABLEAUX . . . . .	ix
LISTE DES FIGURES . . . . .	x
CHAPITRE 1 INTRODUCTION . . . . .	1
1.1 Information quantique . . . . .	2
1.2 Les bits quantiques - supports de l'information quantique . . . . .	2
1.2.1 Superposition d'états . . . . .	3
1.2.2 Sphère de Bloch . . . . .	3
1.2.3 Critères de DiVicenzo . . . . .	4
1.3 Qubits adressables optiquement . . . . .	5
1.3.1 Caractéristiques et propriétés . . . . .	5
1.3.2 Contrôle cohérent . . . . .	6
1.4 Candidats possibles . . . . .	6
1.5 Les centres isoélectroniques . . . . .	7
1.5.1 Généralités . . . . .	8
1.5.2 Propriétés spécifiques . . . . .	8
1.6 Stabilisation de l'environnement électrostatique . . . . .	9
1.7 Problématique . . . . .	9
1.8 Objectifs . . . . .	10
1.8.1 Objectif général . . . . .	10
1.8.2 Objectifs spécifiques . . . . .	10
1.9 Originalité . . . . .	10
CHAPITRE 2 CENTRES ISOELECTRONIQUES DE Te DANS LE ZnSe . . . . .	11
2.1 Croissance des échantillons . . . . .	11
2.2 Configuration atomique des émetteurs . . . . .	12

2.3	Mécanisme de liaison d'un exciton . . . . .	13
2.4	Autres particules excitoniques . . . . .	14
2.5	Structure fine . . . . .	14
2.6	Règles de sélection . . . . .	14
CHAPITRE 3 SYSTÈME À DEUX NIVEAUX EN INTERACTION AVEC UN CHAMP CLASSIQUE . . . . .		16
3.1	Équation de Schrödinger . . . . .	16
3.1.1	Hamiltonien d'interaction . . . . .	16
3.1.2	Approximation de l'onde tournante . . . . .	18
3.1.3	Fréquence de Rabi . . . . .	18
3.1.4	Référentiel tournant . . . . .	19
3.2	Variation de la population de l'état excité . . . . .	20
3.2.1	Sphère de Bloch . . . . .	20
3.2.2	Oscillations de Rabi . . . . .	21
3.2.3	Equations de Bloch optiques . . . . .	22
3.3	Excitation résonante d'un système à deux niveaux . . . . .	23
3.3.1	Régime permanent des équations de Bloch optiques . . . . .	23
3.3.2	Effet Stark AC . . . . .	24
3.3.3	Doublet de Autler-Townes . . . . .	26
CHAPITRE 4 MICRO-PHOTOLUMINESCENCE RÉVOLUE EN POLARISATION . . . . .		28
4.1	Montage expérimental . . . . .	28
4.1.1	Microscope confocal . . . . .	28
4.1.2	Stabilité du montage . . . . .	30
4.2	Détection en polarisation croisée . . . . .	31
4.3	Identification d'un émetteur quantique . . . . .	31
4.4	Excitation résonante . . . . .	32
CHAPITRE 5 STABILISATION DE L'ENVIRONNEMENT ÉLECTRONIQUE D'UNE MOLÉCULE DE $\text{Te}_2$ DANS LE $\text{ZnSe}$ . . . . .		35
5.1	Calcul du décalage spectral d'une particule liée soumise à un champ électrique . . . . .	35
5.1.1	Modèle de l'atome d'hydrogène . . . . .	35
5.1.2	Application du modèle à un exciton lié . . . . .	37
5.2	Décalage spectral de l'énergie d'émission d'un exciton lié à une paire de $\text{Te}_2$ dans le $\text{ZnSe}$ . . . . .	38
5.2.1	Photoluminescence non-résonante . . . . .	39

5.2.2	Photoluminescence résonante . . . . .	39
5.3	Régime d'excitation non-résonante très faible . . . . .	40
5.4	Régime d'excitation non-résonante faible . . . . .	43
5.5	Compensation du taux de charge . . . . .	43
5.6	Modélisation du spectre d'absorption . . . . .	48
CHAPITRE 6 EXCITATION RÉSONANTE D'UN EXCITON LIÉ A UNE MOLÉ- CULE DE $\text{Te}_2$ DANS LE $\text{ZnSe}$ . . . . .		
		52
6.1	Excitation résonante CW d'un exciton lié . . . . .	52
6.1.1	Courbe de saturation . . . . .	52
6.1.2	Doublet de Autler-Townes . . . . .	54
6.2	Excitation pulsée d'un exciton lié . . . . .	57
6.2.1	Mesure de la photoluminescence résonante par effet tunnel . . . . .	58
6.2.2	Oscillations de Rabi amorties d'un exciton lié . . . . .	60
CHAPITRE 7 CONCLUSION . . . . .		
		62
7.1	Synthèse des travaux . . . . .	62
7.2	Améliorations futures . . . . .	62
RÉFÉRENCES . . . . .		
		64



## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 5.1	Paramètres $A$ et $S$ utilisés pour l'ajustement du modèle sur la Fig. 5.12. L'asymétrie augmente lorsque l'excitation non-résonante varie de 0 nW à 40 nW. Sans excitation résonante l'environnement est chargé est l'asymétrie est de -6.7%. Pour une excitation non-résonante de 40 nW l'asymétrie est maximale (80%), ce qui correspond à un environnement déchargé. Lorsqu'on augmente encore la puissance d'excitation non-résonante l'asymétrie diminue de nouveau. . . . .	50
-------------	--	----

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Représentation graphique de l'état d'un système quantique à deux niveaux dans la sphère de Bloch. $\theta$ représente la population et $\phi$ la phase relative entre les niveaux. . . . .	4
Figure 2.1	Schéma de l'échantillon de ZnSe :Te étudié. La zone active de l'échantillon (pas à l'échelle) est encapsulée entre deux couches de 40 nm de ZnSe. . . . .	11
Figure 2.2	Paire dans le plan. . . . .	12
Figure 2.3	Paire hors plan. . . . .	12
Figure 2.4	Macro-photoluminescence non-résonante d'un échantillon de ZnSe dopé au Te. L'émission d'excitons liés aux paires de Te se traduit par de multiples raies entre 2690 meV et 2805 meV. Figure adaptée de [1]. . . . .	13
Figure 2.5	Micro-photoluminescence non-résonante résolue en polarisation d'une paire de Te dans le ZnSe de symétrie $C_{2v}$ . On observe les raies associées à l'exciton (X et Y), au bi-exciton (XX et YY) et au trion ( $X^*$ ). . . . .	15
Figure 2.6	Représentation schématique du mécanisme de recombinaison radiative d'un biexciton liée à une molécule diatomique de Te de symétrie $C_{2v}$ dans le ZnSe. . . . .	15
Figure 3.1	Représentation de la trajectoire du vecteur de Bloch pour $\Delta = 0$ et pour $\Delta \neq 0$ . . . . .	21
Figure 3.2	Oscillations de Rabi . . . . .	21
Figure 3.3	Population de l'état excité en fonction de l'angle de rotation $\Omega_{\Gamma}t$ . Oscillations de Rabi amorties. . . . .	24
Figure 3.4	Structure fine d'un système à deux niveaux avec et sans couplage. Le couplage entre les photons issus d'une excitation laser résonante et $ X\rangle$ fait apparaître 2 nouvelles transitions d'énergie $\hbar\omega_L \pm \frac{\hbar\Omega}{2}$ . . . . .	25
Figure 3.5	Schéma énergétique d'un système à deux niveaux couplé à un niveau témoin. En notant $E_T$ l'énergie de l'état témoin, on observe à présent deux transitions d'énergie $E_T \pm \hbar\Omega/2$ . . . . .	26
Figure 4.1	Montage expérimental. Microscope confocal qui permet des mesures de micro-photoluminescence résonante sur une molécule unique de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. . . . .	29
Figure 4.2	Photoluminescence non-résonante d'un exciton lié à une molécule de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. . . . .	32

Figure 4.3	Excitation résonante d'un exciton lié à une paire de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. On excite la transition $ Y\rangle$ avec un laser CW quasi-résonant (on définit $E = 0 \mu\text{eV}$ comme l'énergie d'émission de la photoluminescence $ Y\rangle$ en condition d'excitation non-résonante) et on détecte la photoluminescence issue de la transition $ X\rangle$ . . . . .	33
Figure 5.1	Photoluminescence d'une molécule unique de $\text{Te}_2$ excitée (a) à l'énergie des excitons libres dans le ZnSe, (b) en résonance avec $ Y\rangle$ , et (c) en résonance avec $ Y\rangle$ en ajoutant un laser de faible puissance à 405 nm. Les données sont modélisées (lignes pleines) par des fonctions gaussiennes en (a) et Lorentziennes en (b) et (c). . . . .	38
Figure 5.2	Schéma de la stratégie de mesure de la photoluminescence résonante de la transition $ Y\rangle$ . . . . .	40
Figure 5.3	Absorption d'un émetteur unique de $\text{Te}_2$ dans le régime d'excitation non-résonante très faible. Varier l'excitation non-résonante de 0 nW à 8 nW modifie significativement l'absorption de $ Y\rangle$ : à faible énergie (0 nW) l'absorption est une lorentzienne large. Pour des puissance plus grandes (0.5 nW) à 3 nW on observe plusieurs raies d'absorption fines (15 $\mu\text{eV}$ ). Finalement pour une excitation de 8 nW on retrouve une lorentzienne relativement étroite. Cette évolution résulte de l'interaction entre l'exciton lié à la molécule de $\text{Te}_2$ et son environnement électrostatique. . . . .	41
Figure 5.4	Energie de résonance (cercles blancs) et largeur spectrale (barre verticale associée) des spectres présentés en Fig. 5.3. . . . .	42
Figure 5.5	Effet d'un laser non-résonant sur le spectre de photoluminescence-excitation d'une molécule de $\text{Te}_2$ différente de celle présentée en 5.3. On explore ici un régime où l'excitation non-résonante est plus intense. Après un décalage spectral vers le bleu de 112 $\mu\text{eV}$ on observe un décalage vers le rouge de 10 $\mu\text{eV}$ . . . . .	44
Figure 5.6	Energie de résonance (cercle blanc) et largeur de raie (barre verticale) d'un exciton lié à une molécule de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. En changeant la puissance d'excitation non-résonante de 0 nW à 320 nW le spectre d'absorption passe d'une raie lorentzienne large 0 nW à une transition fine, proche de ce qu'on attend dans la limite radiative. . . . .	45

Figure 5.7	Absorption de $ Y\rangle$ en fonction de la puissance d'excitation non-résonante pour différentes puissances d'excitation résonante. La puissance d'excitation non-résonante nécessaire à atteindre le maximum d'absorption augmente avec la puissance d'excitation résonante. . . . .	46
Figure 5.8	Photoluminescence de l'état $ X\rangle$ issue exclusivement de l'excitation non-résonante de la diode laser à 405 nm. . . . .	47
Figure 5.9	Puissance d'excitation non-résonante nécessaire pour obtenir un décalage spectral nul entre l'énergie de résonance de $ Y\rangle$ et son énergie d'émission en photoluminescence non-résonante en fonction de la puissance d'excitation résonante. La dépendance est sublinéaire. . . . .	47
Figure 5.10	Schéma de l'environnement électrostatique d'un exciton $ X\rangle$ lié à une molécule de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. $\gamma_c$ et $\gamma_d$ sont respectivement les taux de charge et de décharge . . . . .	48
Figure 5.11	Schéma de la marche aléatoire de l'énergie de résonance d'un exciton lié à une molécule de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. . . . .	49
Figure 5.12	Modélisation des spectre d'absorption de la transition $ Y\rangle$ d'un exciton lié à une molécule de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe. Le temps de vie radiatif utilisé pour la modélisation est de 100 ps. L'écart entre deux niveaux d'énergie est fixé à 12.75 $\mu\text{eV}$ . On regroupe ici deux émetteurs différents, l'un étudié à basse puissance (0 nW-8 nW), et l'autre à plus haute puissance (40 nW-160 nW). Cette juxtaposition a nécessité une translation de l'énergie du deuxième émetteur. . . . .	51
Figure 6.1	Intensité de la photoluminescence de $ Y\rangle$ mesurée en utilisant $ X\rangle$ comme état témoin. La puissance de saturation $P_{sat}$ est modifiée par l'ajout d'un laser non-résonant à une puissance de 8 nW. Sans excitation non-résonante, l'ajustement d'une fonction de saturation (Eq. 6.1) donne $P_{sat} = 2.74 \mu\text{W}$ . Avec l'ajout de l'excitation non-résonante elle diminue d'un ordre de grandeur pour atteindre $P_{sat} = 0.78 \mu\text{W}$ . . . . .	54
Figure 6.2	Largeur de raie de la photoluminescence issue de la transition $ X\rangle$ lorsque la transition $ Y\rangle$ est excitée en résonance en fonction de la puissance du laser résonant. On trace la largeur de raie en fonction de $\sqrt{P}$ . Un ajustement linéaire nous permet de donner $\mu = 9.6 \text{ D}$ . . . . .	55

Figure 6.3	Spectre de photoluminescence résonante. On excite en résonance la transition $ Y\rangle$ et on détecte la photoluminescence issue de la transition $ X\rangle$ . L'apparition d'un doublet pour une excitation non-résonante de $1.25\ \mu\text{W}$ est le résultat du couplage entre un photon et l'état $ Y\rangle$ . L'écart entre les 2 raies du doublet de Autler-Townes est d'environ $180\ \mu\text{eV}$ , ce qui correspond à un moment dipolaire de 82 D. . . . .	57
Figure 6.4	Photoluminescence non-résonante de deux excitons liés à des molécules de $\text{Te}_2$ proche l'une de l'autre (la distance est inférieure au diamètre de la zone de détection, soit environ $0.5\ \mu\text{m}$ ). Dans le suite on excite en résonance la transition $ Y\rangle$ de l'exciton N°1 et on détecte la photoluminescence issue de l'exciton N°2. . . . .	59
Figure 6.5	Etude de la photoluminescence de l'exciton N°2 par effet tunnel. L'excitation est résonante avec les transitions $ X\rangle$ et $ Y\rangle$ de l'exciton N°1. L'encadré à droite donne un exemple de stratégie de détection. Pour cet exemple la transition $ Y_1\rangle$ est excité en résonance avec un laser CW polarisé $\pi_Y$ . On détecte la photoluminescence « croisée », c'est-à-dire $\pi_X$ . . . . .	59
Figure 6.6	Oscillations de Rabi amorties d'un exciton lié à une paire de $\text{Te}_2$ dans le $\text{ZnSe}$ . . . . .	61

## CHAPITRE 1 INTRODUCTION

La physique quantique montre depuis ses débuts une excellente résilience face à des mesures expérimentales toujours plus précises et ambitieuses. La démonstration de la violation des inégalités de Bell [2] par A. Aspect en 1982 [3] convainc les derniers détracteurs et sonne l'avènement d'une course aux technologies quantiques. Les dix dernières années ont été marquées par le développement de technologies NISQ [4] (noisy intermediate-scale quantum, ou quantique d'échelle intermédiaire bruité). De grands groupes commerciaux comme IBM, Google, Intel, ou Microsoft ont pris le relai des laboratoires de recherche classiques et ont investi dans le développement de prototypes imparfaits, comportant moins d'une centaine de qubits pour les meilleurs d'entre eux. Ils sont capables de résoudre des problèmes bien précis, souvent imposés par la technologie utilisée. Ces calculateurs NISQ s'appuient pour la plupart sur l'utilisation de qubits supraconducteurs [5], et ne comportent pas de correction d'erreur, pourtant indispensable compte tenu de l'inévitable décohérence inhérente à l'information quantique. On est donc bien loin de la « suprématie quantique » [6], qui désigne la capacité de réaliser des calculs impossibles (temps de calcul trop long) pour un ordinateur classique.

L'ordinateur quantique optique est encore dans une phase préliminaire de son développement. Les premières mesures « on chip » ont été démontrées [7]. Cette technologie permet un contrôle rapide de l'état quantique des qubits grâce aux lasers à impulsion, ainsi que le développement de réseaux d'ordinateurs quantiques par l'intermédiaire de fibres optiques. Un tel réseau utilise des qubits adressables optiquement comme support de l'information quantique. Ils ont la particularité de coupler un qubit stationnaire, par exemple un spin nucléaire, à un qubit volant, comme un photon. De nombreuses technologies de qubits adressables optiquement sont à l'étude en laboratoire. Chacune présente des avantages et des inconvénients, et pour l'instant aucune ne s'est imposée.

Ce projet de recherche s'inscrit dans un travail collectif visant à démontrer le potentiel des défauts de taille atomique dans les semi-conducteurs. Ici, nous nous intéressons aux centres isoélectroniques, et plus particulièrement aux molécules de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  comme qubits adressables optiquement. Il est possible d'initialiser le spin d'un trou lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  en un temps inférieur à 150 ps et avec une fiabilité supérieure à 98.5% [8]. On cherche maintenant à évaluer la force d'oscillateur de notre émetteur, c'est-à-dire son couplage avec la lumière, ainsi que son temps de cohérence de phase. Nous montrerons que l'excitation résonante d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  n'est possible qu'à condition de

stabiliser l'environnement électronique grâce à un laser non-résonant ultra-faible [9]. De plus, la réduction des fluctuations dans le voisinage immédiat de l'émetteur améliore le temps de cohérence de notre émetteur.

Dans cette section on présente les propriétés nécessaires à l'évaluation du potentiel d'un qubit adressable optiquement. Parmi plusieurs candidats possibles on s'intéresse plus particulièrement aux molécules de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe.

## 1.1 Information quantique

Dans la course vers le développement d'un ordinateur quantique capable de mettre en application n'importe quel algorithme quantique, la communauté scientifique fait face à un défi technologique. Pour bien comprendre l'effort nécessaire, il faut décrire quelques fondements de l'information quantique.

En informatique classique, un bit est une brique d'information binaire qui vaut 0 ou 1. Cette information prend souvent la forme d'une circulation de charges électriques. Par convention, la valeur est 1 si le courant électrique circule, et 0 sinon. La lecture d'un bit classique est déterministe. Si on répète la mesure plusieurs fois on obtiendra toujours le même résultat. Ce n'est pas le cas pour un ordinateur quantique, car il utilise des qubits caractérisés par la superposition d'états quantiques.

L'état d'un système quantique, ici le qubit, est influencé par l'environnement avec lequel il interagit. Cette influence, si elle n'est pas contrôlée, prend la forme d'une décohérence qui rend difficile le calcul quantique, car on perd l'information initiale en un temps court. Pour pallier à ce problème, il est nécessaire de faire de la correction d'erreur [10], qui n'est possible qu'avec un grand nombre de qubits.

Pour utiliser des qubits dans le cadre d'un calcul, ils doivent être intégrés à un processeur capable de générer des portes logiques [11]. En information quantique les portes logiques sont basées sur l'initialisation, et l'intrication des qubits entre eux. Une condition nécessaire à l'intrication est l'indiscernabilité. En termes plus prosaïques, les qubits doivent tous être identiques. Ainsi le défi consiste à créer un grand nombre de qubits, tous identiques, isolés de leur environnement, mais reliés entre eux.

## 1.2 Les bits quantiques - supports de l'information quantique

Un bit d'information quantique (qubit) est la brique élémentaire de l'ordinateur quantique. Le support de l'information est un système quantique à deux niveaux. L'information est

contenue dans l'état quantique du système. Soit  $|\Psi\rangle$  cet état, alors on peut l'exprimer dans la base du niveau fondamental  $|0\rangle$ , et du niveau excité  $|X\rangle$  :

$$|\Psi\rangle = c_0 |0\rangle + c_X |X\rangle, \quad (1.1)$$

où  $c_0$  et  $c_X$  vérifient la condition de normalisation  $|c_0|^2 + |c_X|^2 = 1$ . Dans ces conditions l'état quantique est pleinement défini par  $c_0$  et  $c_X$ .

En manipulant l'état de notre système à deux niveaux, c'est-à-dire les phases et amplitudes de  $c_0$  et  $c_X$ , on peut stocker et manipuler de l'information.

### 1.2.1 Superposition d'états

La superposition d'états correspond au cas où  $c_0 \neq 0$  et  $c_X \neq 0$ . Ainsi la lecture du qubit donnera  $|0\rangle$  avec une probabilité  $|c_0|^2$  et  $|X\rangle$  avec une probabilité  $|c_X|^2$ . Il s'agit là d'une différence majeure et intrinsèque avec l'information classique qui elle est déterministe.

On peut à présent réunir plusieurs qubits, pour créer une mémoire quantique. On définit l'état du registre comme l'état quantique du système global. Si on considère deux qubits alors on a

$$|\Psi\rangle = c_{00} |00\rangle + c_{0X} |0X\rangle + c_{X0} |X0\rangle + c_{XX} |XX\rangle, \quad (1.2)$$

avec  $|c_{00}|^2 + |c_{0X}|^2 + |c_{X0}|^2 + |c_{XX}|^2 = 1$ . On voit que la taille du registre double à chaque fois qu'on ajoute un qubit. Pour  $n$  qubit on a  $2^n$  états superposables. Le contrôle de l'état quantique  $|\Psi\rangle$  correspond à une opération sur le registre dans sa globalité. Ainsi on peut dire que la puissance de calcul de l'ordinateur quantique double à chaque fois qu'on ajoute un qubit.

### 1.2.2 Sphère de Bloch

La sphère de Bloch permet de représenter l'état quantique d'un qubit. On impose la condition de normalisation en exprimant l'état quantique du système dans une base particulière :

$$|\Psi\rangle = \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) |0\rangle + e^{i\phi} \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) |X\rangle, \quad (1.3)$$

où  $0 \leq \theta \leq \pi$  et  $0 \leq \phi \leq 2\pi$ . Ainsi l'état quantique du système est représenté par un vecteur de norme 1 dans la sphère unité. Dans le cas de l'information quantique, on fait référence à



cette représentation comme la sphère de Bloch présentée en Fig. 1.1.

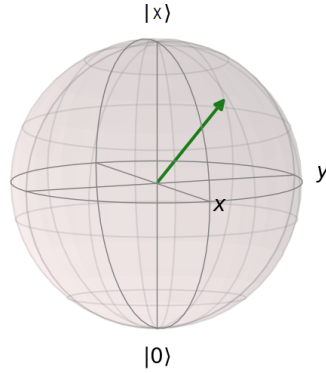


Figure 1.1 Représentation graphique de l'état d'un système quantique à deux niveaux dans la sphère de Bloch.  $\theta$  représente la population et  $\phi$  la phase relative entre les niveaux.

### 1.2.3 Critères de DiVicenzo

Les critères qui décrivent ce dont on a besoin pour créer un ordinateur quantique ont été énoncés par DiVicenzo, alors employé d'IBM [12]. Ces critères sont encore d'actualité malgré l'évolution du domaine.

1. **Un système physique de taille variable dont chaque qubit est caractérisé**  
Le système physique doit comporter un grand nombre de qubits, pour l'implémentation de correction d'erreur, et chacun d'entre eux doit être caractérisé par un Hamiltonien connu.
2. **Chaque qubit peut être initialisé dans un état quelconque**  
Il doit être possible d'initialiser le système n'importe où dans la sphère de Bloch. En information quantique l'initialisation permet de modéliser le système physique que l'on souhaite optimiser.
3. **Le temps de cohérence des qubits doit être grand devant le temps d'opération**  
Le temps de cohérence est le temps durant lequel l'état quantique du qubit est décrit par l'Hamiltonien du système. Ce temps doit être long devant le temps nécessaire à modifier l'état quantique. Il s'agit d'une condition nécessaire à la réalisation de portes logiques.
4. **Le système possède une collection universelle de portes logiques**  
Les portes logiques permettent de réaliser des calculs. Il s'agit soit de modifier l'état quantique du qubit, soit d'intriquer  $n$  qubits entre eux.

## 5. La capacité de lire chaque qubit spécifiquement

La lecture des qubits en fin de calcul permet d'obtenir le résultat de l'optimisation. La lecture doit être la plus fidèle possible, et il faut être capable de lire l'état d'un qubit en particulier.

Pour pouvoir réaliser un réseau quantique, DiVicenzo ajoute 2 critères qui nous concernent plus particulièrement :

1. *La possibilité de convertir un qubit stationnaire en qubit volant*
2. *La possibilité de transmettre un qubit volant fidèlement*

Pour créer un réseau quantique capable de connecter plusieurs ordinateurs quantiques, il est nécessaire de pouvoir transformer un qubit stationnaire ayant une longue durée de vie en qubit volant, qui peut transporter l'information quantique sur de longues distances afin d'intriquer entre eux deux ordinateurs quantiques. Le candidat idéal comme qubit volant est le photon, car il interagit faiblement avec son environnement et donc conserve l'information quantique sur de longues distances. Ces deux critères sont réalisés grâce à des qubits adressables optiquement.

### 1.3 Qubits adressables optiquement

La communication par fibre optique est largement implantée dans le monde, et permet un taux de transmission de l'information élevé. De plus les photons interagissent peu avec leur environnement, ils conservent donc leur état quantique sur des temps longs, et sont ainsi de bons supports de l'information quantique.

Le développement d'une interface entre un photon et un qubit stationnaire permettrait de faire un pas en avant vers le développement d'un réseau quantique à longue distance. En effet le transfert d'information quantique à longue distance ( $> 20$  km) est actuellement limité par les pertes en ligne des fibres optiques. Placés à intervalles réguliers le long de la fibre optique, ces qubits adressables optiquement permettraient de jouer le rôle de « répéteurs quantiques » capables d'intriquer le photon incident sur le répéteur au photon sortant, et donc l'information quantique contenue dans le photon émis et le photon reçu au bout de la fibre optique.

#### 1.3.1 Caractéristiques et propriétés

En plus des critères énoncés précédemment, le choix du système physique et l'évaluation de son potentiel comme qubit adressable optiquement dépendent de deux paramètres essentiels :

couplage et homogénéité.

**Couplage** Pour que l'échelle de temps caractérisant l'intrication entre le photon incident et le photon sortant soit compatible avec la nécessité d'atteindre un taux de transfert élevé de l'information, le système doit avoir un fort couplage avec la lumière.

**Homogénéité** Dans le cadre du développement d'un réseau quantique, il est nécessaire d'intriquer les répéteurs quantiques placés à intervalles réguliers le long d'une fibre optique. Il faut donc que les photons émis par photoluminescence soient indiscernables, et donc que chaque qubit adressable optiquement émette des photons de même énergie. Pour cela il faut réduire l'élargissement inhomogène des transitions optiques mises en jeu.

### 1.3.2 Contrôle cohérent

L'utilisation d'un système à deux niveaux dans le cadre de l'information quantique nécessite de pouvoir initialiser et manipuler l'état quantique du système. En optique quantique le contrôle cohérent d'un système consiste à transférer l'information contenue dans une source cohérente à un qubit. Si on décrit l'état quantique avec les notations de l'Eq. 1.3, alors le contrôle cohérent d'un système consiste à donner n'importe quelle valeur aux angles  $\theta$  et  $\phi$ .

## 1.4 Candidats possibles

On présente ici les systèmes qui sont actuellement à l'étude dans les laboratoires du monde entier comme candidats possibles pour créer une interface optique efficace.

Il semble que les boîtes quantiques et les centres NV dans le diamant soient les systèmes les plus développés technologiquement, mais certains systèmes plus exotiques émergent, comme les doubles lacunes dans le SiC. Notre groupe s'intéresse aux centres isoélectroniques, qui possèdent l'homogénéité des défauts atomiques et présentent un fort couplage avec la lumière.

**Boîte quantique autoassemblée** Lors de la croissance par épitaxie par jet moléculaire de deux matériaux n'ayant pas le même paramètre de maille, comme le GaAs et le InAs, on observe la formation d'îlots. Ces nanostructures sont équivalentes à un système à deux niveaux [13,14]. Intégrés dans une micro-cavité semi-conductrice, ils sont alors utilisés comme source de photons uniques indiscernables [15,16]. Les puits quantiques en micro-cavité semi-conductrice sont fortement couplés à la lumière, avec un moment dipolaire pouvant atteindre 50 D [17]. De plus, les dernières technologies démontrent une forte « brillance ». C'est-à-dire

que la probabilité d'obtenir un unique photon par impulsion issue du puits quantique est grande (15.4 % pour [16]).

Les boîtes quantiques sont en revanche sujettes à un très fort élargissement inhomogène. De plus puisqu'il s'agit d'un objet nanoscopique il est difficile d'en produire un nombre suffisant qui émettent de manière déterministe à la même énergie [18].

**Centre NV dans le diamant** Un centre NV dans le diamant est un émetteur quantique formé d'un atome d'azote et d'une lacune. Le centre peut être neutre ( $NV^0$ ) ou chargé négativement ( $NV^-$ ) [19]. L'état fondamental de la configuration chargé négativement possède un spin total  $S=1$ . C'est l'état le plus intéressant car il possède un temps de cohérence élevé [20–22], un faible élargissement inhomogène et peut même être utilisé comme émetteur quantique à température ambiante [23]. En revanche il est faiblement couplé avec la lumière, avec un moment dipolaire de l'ordre de 5 D.

De plus, contrairement au SiC le diamant est peu compatible avec les technologies de micro-fabrication à grande échelle.

**Double lacune dans le SiC** La double lacune  $VV^0$  dans le SiC possède un temps de cohérence long ( $T_1 = 14.7$  ns et  $TE = 1$  ms [24]), et a pour avantage d'émettre dans le proche IR. Le SiC est un matériau très répandu, car il est utilisé en électronique. Il a été démontré qu'il est possible de contrôler l'état quantique de cet émetteur [24]. En revanche malgré le grand nombre de prototypes qui ont été développés, de nombreux défauts persistent dans les échantillons.

La recherche d'interface spin-photon est très active. L'objectif est de déterminer le meilleur compromis, car le candidat parfait ne semble pas exister. Notre groupe de recherche participe à cet effort en explorant les caractéristiques et le potentiel des centres isoélectroniques.

## 1.5 Les centres isoélectroniques

Observés pour la première fois en 1966 par Thomas et Hopfield [25], les centres isoélectroniques sont une famille à part entière d'impuretés dans les semi-conducteurs, car ils ne modifient pas l'équilibre des populations d'électrons et de trous. Leurs propriétés atypiques font d'eux des candidats potentiels comme qubits adressables optiquement.

### 1.5.1 Généralités

Un centre isoélectronique est constitué d'une ou plusieurs impuretés substitutionnelles qui possèdent le même nombre d'électrons de valence que les atomes qu'elles remplacent. La différence d'électronégativité entre l'atome original et l'impureté crée un état lié, c'est-à-dire un niveau d'énergie inférieur à l'énergie de la bande de conduction pour les électrons, ou supérieur à la bande de valence pour les trous. Cet état lié peut être un électron, un trou, ou un exciton selon le mécanisme de capture. Les centres isoélectroniques dans les matériaux de type III-V ont été étudiés [26] et il a été démontré qu'il est possible de contrôler l'état quantique d'une particule excitonique liée à un centre isoélectronique d'azote dans le GaAs [27]. Dans les matériaux II-IV on peut citer outre le tellure dans le ZnSe [1, 8, 28], l'oxygène ou le calcium dans le ZnTe. Le potentiel des centres isoélectroniques comme support de l'information quantique a déjà été démontré pour les matériaux de III-V [27], et des études préliminaires sur les centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe ont montré la possibilité d'initialiser le spin d'un trion en un temps de l'ordre de la centaine picosecondes [8]. Dans ce chapitre nous allons discuter des propriétés intrinsèques des centres isoélectroniques et justifier de leur potentiel comme support de l'information quantique.

### 1.5.2 Propriétés spécifiques

**Homogénéité** Contrairement à des technologies très avancées comme les puits quantiques ou les qubits supraconducteurs, les centres isoélectroniques sont constitués d'un petit nombre d'atomes, ce qui leur confère une homogénéité remarquable. Ainsi on mesure pour les centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe des élargissements inhomogènes très faibles ( $\approx 27$  GHz) comparés à ceux des puits quantiques ( $\approx 10^5$  GHz), ce qui améliore l'indiscernabilité des photons émis par de telles sources. Il s'agit d'une propriété essentielle à la génération de chaîne de photons dans le cadre de la cryptographie quantique.

**Symétrie** D'après le principe de Curie, on sait que la symétrie des causes se retrouve dans les effets produits. Ce principe s'applique aux centres isoélectroniques, car la symétrie du centre isoélectronique impose la structure fine des états liés [29]. On possède alors un grand nombre de sources ayant un faible élargissement inhomogène qui émettent toutes à la même énergie. Cela qui rend possible l'intrication entre des photons provenant de différentes sources.

**Localisation** Le mécanisme de liaison d'une charge aux centres isoélectroniques est tel que la particule excitonique ainsi créée est fortement localisée. La faible dispersion spatiale de la fonction d'onde permet d'isoler le qubit de son environnement, et donc augmente le temps

de cohérence.

On voit ainsi que les centres isoélectroniques possèdent des propriétés particulières qui font d'eux de bons candidats comme qubit adressable optiquement.

## 1.6 Stabilisation de l'environnement électrostatique

Quel que soit le système physique choisi, le qubit interagit avec son environnement. Il a été démontré que la fluctuation de charges isolées dans l'environnement d'un qubit adressable optiquement rend impossible l'excitation résonante [9]. Cet effet contraint l'utilisation de ces systèmes comme support de l'information quantique. La stabilisation de l'environnement électrostatique d'un émetteur quantique est donc un prérequis à l'étude de son potentiel comme qubit. Il a été démontré que l'ajout d'un deuxième laser, souvent non-résonant, permet de compenser la charge de l'environnement apporté par le laser résonant [9, 24, 30]. Dans le cas de systèmes macroscopiques comme les puits quantiques il est possible de localiser ces charges, et donc d'en identifier la nature [31]. Lorsque les charges isolées sont liées à des défauts atomiques, la purification des matériaux hôte et le travail à très basse température ne permettront pas de s'affranchir complètement de cet effet. Ainsi il est inhérent à la totalité des systèmes physiques solides. Il est donc nécessaire de développer des techniques efficaces pour contrôler l'environnement électrostatique, et diminuer la fluctuation des charges dans l'environnement de l'émetteur.

## 1.7 Problématique

Si l'excitation résonante d'un défaut atomique perturbe son environnement électrostatique, alors le contrôle cohérent d'un exciton lié à l'un de ces centres sera nécessairement limité par son interaction avec les défauts du matériau hôte. On sait que même avec des semiconducteurs très purs, il y a toujours un nombre fini d'impuretés dans l'environnement des émetteurs uniques. Ce n'est pas la présence de charges isolées, mais la fluctuation du champ électrique induit par le clignotement des défauts qui se chargent et se déchargent qui est délétère pour la qualité des émetteurs quantiques (élargissement inhomogène et cohérence de phase). Comment peut-on compenser les fluctuations de l'environnement électrostatique d'un centre isoélectronique induites par l'excitation résonante d'un exciton lié ?

## 1.8 Objectifs

### 1.8.1 Objectif général

Exciter en résonance un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe pour déterminer ses propriétés quantiques et examiner son potentiel comme émetteur de photons intriqués.

### 1.8.2 Objectifs spécifiques

1. Démontrer qu'une excitation non-résonante permet de contrôler l'environnement électrostatique d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe.
2. Montrer que la stabilisation de l'environnement électrostatique d'un exciton permet d'améliorer les conditions permettant d'exploiter les propriétés quantiques d'un système (moment dipolaire, temps de cohérence).

Dans un premier temps on démontrera que l'excitation résonante d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe perturbe l'environnement électrostatique et induit une accumulation de charges isolées à proximité de l'émetteur. L'ajout d'un laser non-résonant, d'une énergie supérieure à l'énergie du gap, permet de décharger l'environnement par recombinaison radiative. Ensuite on montrera que la stabilisation de l'environnement électrostatique de l'émetteur permet de rétablir les propriétés quantiques de ce qubit adressable optiquement.

## 1.9 Originalité

Les expériences menées dans le cadre de cette maîtrise de recherche sont originales, et apportent un nouveau regard sur le contrôle de l'environnement électrostatique des émetteurs quantiques liés à des défauts atomiques. L'excitation résonante d'un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe n'a jamais été reportée. Cette technique est pourtant nécessaire au contrôle cohérent d'un exciton lié. Pour rendre possible l'excitation résonante on développe une méthode innovante de contrôle des charges liées dans le voisinage de notre émetteur. On observe pour la première fois le motional narrowing dans le domaine spectrale, ce qui nous apporte une compréhension nouvelle de ce phénomène.

## CHAPITRE 2 CENTRES ISOELECTRONIQUES DE Te DANS LE ZnSe

Nous avons vu l'intérêt tout particulier que représentent les centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe. Dans cette section nous présentons une revue de littérature sur ces émetteurs quantiques. Les échantillons sur lesquels nous avons effectué nos mesures ont été mis à notre disposition par R. André de l'institut Néel à Grenoble.

### 2.1 Croissance des échantillons

Le ZnSe est un matériaux de la famille des semiconducteurs II-IV. L'énergie du gap qui sépare la bande de valence de la bande de conduction se situe dans le bleu (2.82 eV à 4 K [32]). Ce matériau hôte est bien adapté à l'information quantique, car seulement un faible pourcentage des atomes ont un spin nucléaire non nul. Ainsi l'interaction entre le spin nucléaire et le spin électronique est réduite, favorisant le temps de cohérence des électrons et des trous.

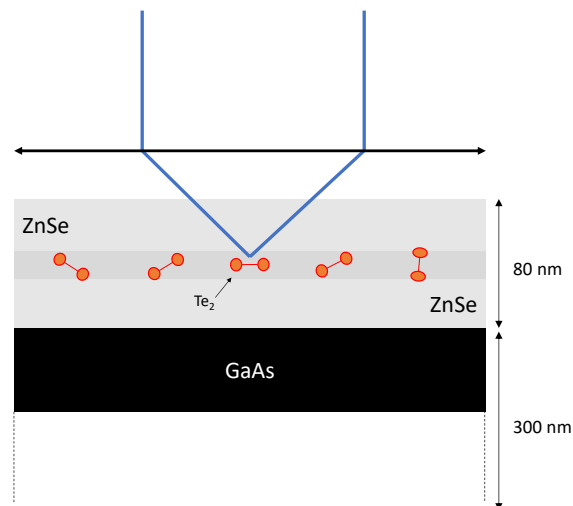


Figure 2.1 Schéma de l'échantillon de ZnSe:Te étudié. La zone active de l'échantillon (pas à l'échelle) est encapsulée entre deux couches de 40 nm de ZnSe.

La région active est une monocouche de ZnSe dopée au Te encapsulée entre deux couches de ZnSe d'épaisseur variable selon les échantillons. La croissance se fait par épitaxie par jet moléculaire sur un échantillon de GaAs (100). La différence de paramètre de maille entre le GaAs et le ZnSe engendre une contrainte dans le réseau cristallin qui dissymétrise la structure cristalline du ZnSe par une extension selon l'axe vertical de croissance.



L'introduction de très faibles quantités de tellure par la méthode de "Delta doping" lors de la croissance d'une des monocouches de l'échantillon permet de substituer certains atomes de sélénium par des atomes de tellure.

Les échantillons étudiés ici sont présentés de manière synthétique en Fig. 2.1. D'après les paramètres des instruments utilisés pour la croissance de l'échantillon, la densité d'atome de Te dans la zone active a été estimée à  $2500 \mu\text{m}^{-1}$ . Cela correspond à une densité de molécule de  $\text{Te}_2$  d'environ  $4 \mu\text{m}^{-1}$ . Des mesures ont révélé une densité d'environ  $1 \mu\text{m}^{-1}$ . On peut donc se limiter à l'étude d'un émetteur unique grâce à un microscope confocal fonctionnant dans les longueurs d'onde de l'ordre de 450 nm.

## 2.2 Configuration atomique des émetteurs

Des arguments de symétrie mis en regard de mesures de micro-photoluminescence ont montré que la substitution génère des paires, formant ainsi des molécules de  $\text{Te}_2$  [1]. La molécule peut être alignée selon l'axe [110] (paire dans le plan) ou selon l'axe [101] (paire hors plan) comme présenté en Fig. 2.2 et 2.3.

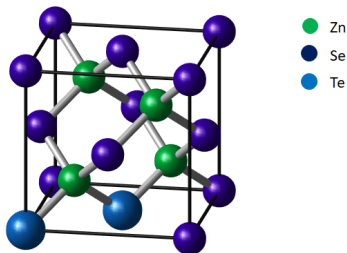


Figure 2.2 Paire dans le plan.

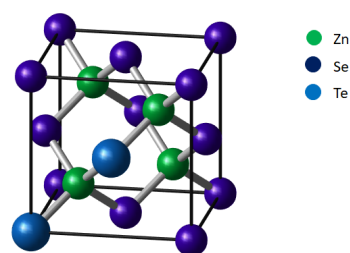


Figure 2.3 Paire hors plan.

Pour certains centres isoélectroniques comme par exemple l'azote dans le GaP [33], la configuration (c'est-à-dire la distance entre deux atomes d'azote) de la paire est parfaitement connue, et associée à une énergie d'émission bien particulière. Dans le cas du Te dans le ZnSe on n'a pas accès directement à cette information. Des mesures de macro-photoluminescence [1] montrent qu'il existe un grand nombre de configurations. A chaque configuration correspond une énergie du photon issue de la recombinaison radiative des particules excitoniques. Ainsi comme on peut le voir sur la Fig. 2.4 la mesure de macro-photoluminescence fait apparaître une structure large étendue de 2690 meV à 2805 meV. Pour observer un émetteur unique il faut utiliser un microscope confocal qui permet d'atteindre la limite de diffraction et d'effec-

tuer une mesure de micro-photoluminescence.

La symétrie des centres isoelectroniques de Te dans le ZnSe a été déterminée par micro-photoluminescence non-résonante résolue en polarisation [1]. Cette technique expérimentale permet d'observer un unique centre isoélectronique, et de déterminer les règles de sélection des différents niveaux énergétiques observés. La seule symétrie observée est  $C_{2v}$  si on considère que le centre isoélectronique est une molécule diatomique de Te. On devrait théoriquement pouvoir aussi observer des paires de symétrie  $D_{2d}$  mais aucun résultat expérimental ne va dans ce sens.

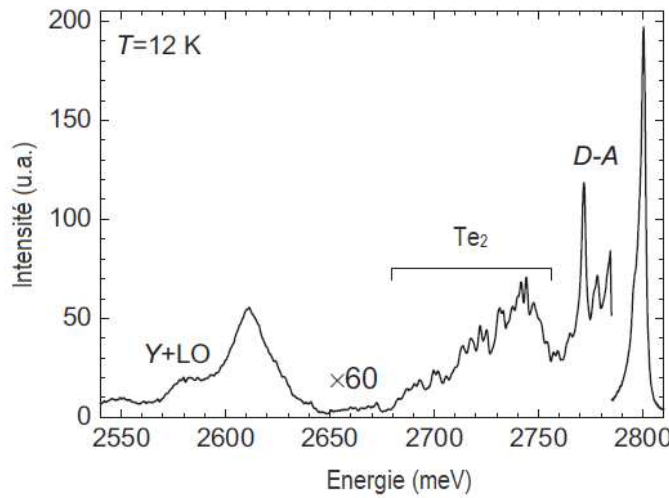


Figure 2.4 Macro-photoluminescence non-résonante d'un échantillon de ZnSe dopé au Te. L'émission d'excitons liés aux paires de Te se traduit par de multiples raies entre 2690 meV et 2805 meV. Figure adaptée de [1].

### 2.3 Mécanisme de liaison d'un exciton

Le tellure a une électronégativité plus faible que le sélénium ( $2.1 < 2.55$  sur l'échelle de Pauling). D'après le modèle HTL développé par Hopfield, Thomas et Lynch [34], on sait que la différence d'électronégativité confère aux centres isoelectroniques un caractère donneur ou accepteur. Dans le cas où l'électronégativité du centre substitutionnel est inférieure, comme c'est le cas ici, alors il s'agit d'un pseudo-donneur capable de piéger un trou. Le trou une fois piégé sur le centre isoelectronique va attirer un électron par attraction de Coulomb et ainsi former une paire électron-trou (exciton) liée.

## 2.4 Autres particules excitoniques

L'exciton est la particule excitonique la plus facile à étudier, car la plus simple (nombre minimal de charges) optiquement active. La molécule de  $\text{Te}_2$  peut piéger des particules plus complexes, comme le bi-exciton ou l'exciton chargé (trion). Ces pseudo-particules sont d'un grand intérêt : le niveau énergétique du bi-exciton est dégénéré en symétrie  $D_2$ , permettant ainsi la génération de paire de photons intriqués.

Après recombinaison radiative de l'exciton, le trion est quant à lui réduit à une unique charge piégée. Cette charge isolée, qui est un trou dans le cas des centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe, à un temps de vie relativement long (de l'ordre de la ms). Elle peut alors être utilisée comme une mémoire quantique [27]. Ici nous nous concentrons sur l'exciton car il est plus facile à étudier, mais les résultats seront applicables à toutes les quasi-particules excitoniques liées au centre excitonique.

## 2.5 Structure fine

La symétrie  $C_{2v}$  de la molécule diatomique de Te impose la structure fine de l'exciton lié. On peut la déterminer théoriquement grâce à la méthode de l'expansion invariante [29]. L'exciton possède 4 niveaux énergétiques. L'état de plus basse énergie est un état "noir", c'est-à-dire qu'il ne peut pas émettre de photon. L'état de plus haute énergie  $|Z\rangle$  est lui aussi un état noir. Ainsi on peut observer deux niveaux d'énergie  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  séparés par l'écart de structure fine (FSS) issue de l'interaction d'échange.

## 2.6 Règles de sélection

Nous pouvons accéder aux règles de sélection grâce à l'étude de la polarisation de la lumière émise par les différents niveaux d'énergie de l'émetteur. La polarisation nous renseigne sur le moment angulaire, car on sait qu'un photon a un spin égal à 1. Ainsi une lumière polarisée circulairement droite ( $\sigma^+$ ) ou gauche ( $\sigma^-$ ) correspond à un spin  $\pm 1$ , alors qu'une lumière polarisée linéairement  $\pi_X$  ( $\pi_X = \sigma^+ + \sigma^-$ ) ou  $\pi_Y$  ( $\pi_Y = \sigma^+ - \sigma^-$ ) correspond à un état de spin nul. Dans le cas de l'exciton lié on sait que sur les 4 niveaux énergétiques, on peut observer les niveaux  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  polarisés linéairement respectivement  $\pi_X$  et  $\pi_Y$ .

Cette étude nous permet de générer une carte en polarisation qu'on présente en Fig. 2.5. Sur cette carte on observe simultanément un exciton, un bi-exciton et un trion liés à la même molécule de  $\text{Te}_2$ . Ainsi l'exciton possède 2 transitions non-dégénérés polarisées linéairement. On observe 2 raies fines d'énergie  $XX$  et  $YY$  car les photons observés proviennent de la

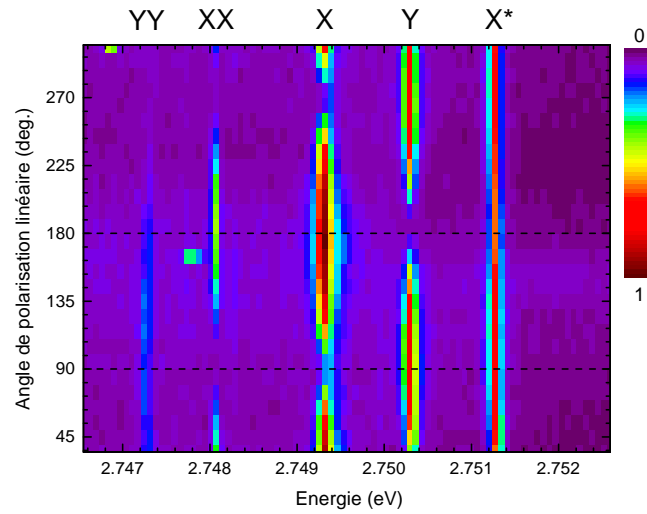


Figure 2.5 Micro-photoluminescence non-résonante résolue en polarisation d'une paire de Te dans le ZnSe de symétrie  $C_{2v}$ . On observe les raies associées à l'exciton (X et Y), au bi-exciton (XX et YY) et au trion ( $X^*$ ).

cascade biexcitonique présentée en 2.6.

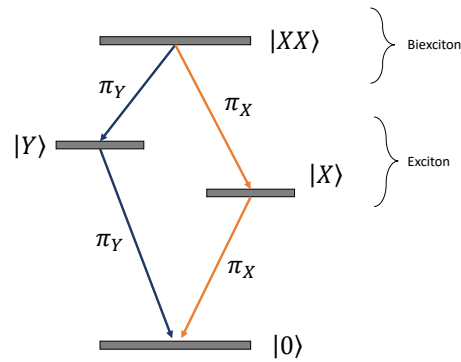


Figure 2.6 Représentation schématique du mécanisme de recombinaison radiative d'un biexciton liée à une molécule diatomique de Te de symétrie  $C_{2v}$  dans le ZnSe.

Les deux états du trion sont dégénérés. On observe une unique raie fine qui apparaît non-polarisée lors d'une carte en polarisation linéaire, car la lumière émise est polarisée circulairement ( $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ ).

## CHAPITRE 3    SYSTÈME À DEUX NIVEAUX EN INTERACTION AVEC UN CHAMP CLASSIQUE

L'interaction entre un système à deux niveaux et un champ électrique classique est une composante théorique nécessaire à l'étude d'un qubit adressable optiquement. Le contrôle cohérent d'un système à deux niveaux est équivalent à la réalisation d'opérations logiques sur un qubit.

En considérant un champ électrique classique, l'approche théorique que nous développons dans la suite est appelée « première quantification », en opposition avec la théorie de la « seconde quantification » qui considère l'interaction entre un système à deux (ou plus) niveaux d'énergie et un champ quantifié.

Dans ce qui suit, les niveaux d'énergie sont quantifiés. Nous utilisons la notation  $|0\rangle$  pour représenter l'état fondamental, et  $|X\rangle$  pour désigner l'état excité. Dans un semiconducteur, l'état excité est la paire électron-trou liée, appelée exciton. Ainsi dans la suite  $|0\rangle$  représente l'état du vide, et  $|X\rangle$  représente l'exciton.

Les équations de Bloch optiques permettent l'étude des composantes de la matrice densité représentant l'état quantique du système à deux niveaux en interaction avec un champ classique. Dans cette section nous présentons les hypothèses et les calculs nécessaires à leur élaboration.

### 3.1 Équation de Schrödinger

La dynamique de l'interaction entre un champ et un atome est décrite par l'équation de Schrödinger. Il est nécessaire de faire un certain nombre d'hypothèses pour être capable de la résoudre explicitement.

#### 3.1.1 Hamiltonien d'interaction

On commence par exprimer le champ classique issue du laser par

$$\mathbf{E} = \hat{\epsilon} E_0 \cos(\omega t). \tag{3.1}$$

L'approximation dipolaire nous permet de négliger les variations du champ électrique devant la taille caractéristique des fonctions d'onde impliquées. Comme on l'a vu précédemment l'énergie des états liés de notre système se situe dans les longueurs d'onde visibles ( $\approx 450$  nm),

soit à plusieurs ordres de grandeur de la taille du rayon de Bohr de l'exciton ( $\approx 0.5 \text{ \AA}$ ).

En notation complexe on peut écrire

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0^{(+)} e^{-i\omega t} + \mathbf{E}_0^{(-)} e^{i\omega t} = \mathbf{E}^{(+)} + \mathbf{E}^{(-)}. \quad (3.2)$$

L'hamiltonien total pour le champ et l'atome est donné par

$$H = H_A + H_{AC} \quad (3.3)$$

où  $H_A = \hbar\omega_0 |X\rangle \langle X|$  est le hamiltonien d'évolution de l'atome dans le vide et en l'absence de champ, et  $H_{AC} = -\mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$  est le hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ classique.  $\mathbf{d}$  est l'opérateur dipolaire atomique. L'opérateur dipolaire  $\mathbf{d}$  peut s'exprimer en fonction de la position de l'électron  $\mathbf{r}_e$  par

$$\mathbf{d} = -e\mathbf{r}_e. \quad (3.4)$$

On définit alors l'opérateur parité  $\Pi$  tel que  $\Pi \mathbf{r}_e \Pi^\dagger = -\mathbf{r}_e$  et  $\Pi^2 = 1$ . On montre facilement que

$$[\Pi, \mathbf{r}_e]_+ = 0, \quad (3.5)$$

où  $[a, b]_+ = ab + ba$  est l'anticommutateur de  $a$  et  $b$ . De plus  $H_A$  s'exprime en fonction de la position et de la vitesse de l'électron donc dans le cas où le potentiel est invariant par la transformation  $\Pi$  on a aussi

$$[H_A, \mathbf{r}_e]_+ = 0. \quad (3.6)$$

Il existe donc une base de co-diagonalisation de l'hamiltonien  $H_A$  et de  $\mathbf{r}_e$ , donc de  $\mathbf{d}$ . On peut ainsi exprimer  $H_{AC}$  et  $H_A$  dans la même base avec

$$\mathbf{d} = \langle 0 | \mathbf{d} | X \rangle |0\rangle \langle X| + \langle X | \mathbf{d} | 0 \rangle |X\rangle \langle 0|. \quad (3.7)$$

On utilise alors l'opérateur annihilation  $\sigma = |0\rangle \langle X|$  et on obtient finalement

$$H = \hbar\omega_0 \sigma^\dagger \sigma - \langle 0 | \mathbf{d} | X \rangle \cdot \mathbf{E} (\sigma + \sigma^\dagger). \quad (3.8)$$

### 3.1.2 Approximation de l'onde tournante

Comme on l'a fait pour le champ électrique du laser, on décompose l'opérateur dipolaire selon

$$\mathbf{d} = \mathbf{d}^{(+)} + \mathbf{d}^{(-)}, \quad (3.9)$$

où  $\mathbf{d}^{(+)}$  et  $\mathbf{d}^{(-)}$ , qui correspondent respectivement aux termes en  $\sigma$  et  $\sigma^\dagger$ , varient en  $e^{\mp i\omega_0 t}$  comme l'évolution de  $|X\rangle$  sous l'influence du hamiltonien d'évolution libre. On peut ainsi écrire

$$H_{AC} = -(\mathbf{d}^{(+)} + \mathbf{d}^{(-)}) \cdot (\mathbf{E}^{(+)} + \mathbf{E}^{(-)}) \quad (3.10)$$

Si on fait l'hypothèse raisonnable que  $|\omega - \omega_0| \ll \omega + \omega_0$  appelée approximation de l'onde tournante, alors on peut négliger les termes en  $\omega + \omega_0$  dont la valeur moyenne dans le temps sera nulle. On simplifie alors notre Hamiltonien d'interaction champ-atome ,

$$H_{AC} = -\mathbf{d}^{(+)} \cdot \mathbf{E}^{(-)} - \mathbf{d}^{(-)} \cdot \mathbf{E}^{(+)}. \quad (3.11)$$

### 3.1.3 Fréquence de Rabi

Si on définit la fréquence de Rabi  $\Omega$  par

$$\Omega = -\frac{2 \langle 0 | \mathbf{d} | X \rangle \cdot \hat{\mathbf{e}} E_0}{\hbar} \quad (3.12)$$

Alors on peut simplifier l'Eq. 3.8,

$$H_{AC} = \frac{\hbar \Omega}{2} (\sigma + \sigma^\dagger). \quad (3.13)$$

La fréquence de Rabi  $\Omega$  rend compte de la force de l'interaction entre le champ et l'atome.  $\Omega$  augmente si l'intensité du champ électrique  $E_0$  augmente, ou si le couplage entre le champ et le système à deux niveaux  $\langle 0 | \mathbf{d} | X \rangle \cdot \hat{\mathbf{e}}$  augmente. On peut ainsi définir la force d'oscillateur, appelé aussi moment dipolaire,

$$\mu = \langle 0 | \mathbf{d} | X \rangle. \quad (3.14)$$

Ce paramètre permet de comparer les différents supports de l'information quantique. On

cherche à maximiser  $\mu$ , car une forte interaction entre le laser et le qubit est avantageuse pour pouvoir effectuer du contrôle cohérent. En effet pour une puissance de laser donnée on peut ainsi réaliser une porte logique sur notre qubit plus rapidement.

### 3.1.4 Référentiel tournant

On revient à présent sur l'Hamiltonien d'interaction libre  $H_A$ . On commence par définir les coefficients dépendant du temps  $c_0(t)$  et  $c_X(t)$  tels que l'état quantique de l'atome soit donné par

$$|\Psi\rangle = c_0 |0\rangle + c_X |X\rangle. \quad (3.15)$$

D'après l'équation de Schrödinger on sait que  $i\hbar\partial_t |\Psi\rangle = H |\Psi\rangle$ . D'après les équations 3.8 et 3.13, sachant que  $\sigma = |0\rangle\langle X|$  on peut alors écrire,

$$\partial_t c_0 |0\rangle + \partial_t c_X |X\rangle = -i\omega_0 c_X |X\rangle - i\frac{\Omega}{2} e^{i\omega t} c_X |0\rangle - i\frac{\Omega}{2} e^{-i\omega t} c_0 |X\rangle. \quad (3.16)$$

On pose alors  $\tilde{c}_X = c_X e^{i\omega t}$  et  $\Delta = \omega - \omega_0$ . On peut ainsi écrire,

$$\begin{aligned} \partial_t c_0 &= -i\frac{\Omega}{2} \tilde{c}_X, \\ \partial_t \tilde{c}_X &= i\Delta \tilde{c}_X - i\frac{\Omega}{2} c_0. \end{aligned} \quad (3.17)$$

On pourrait récrire l'état quantique de notre atome dans le nouveau référentiel,

$$|\tilde{\Psi}\rangle = c_0 |0\rangle + \tilde{c}_X |X\rangle. \quad (3.18)$$

Cette notation est équivalente à un changement de référentiel. On se place dans le référentiel du laser, tournant à la vitesse  $\omega$  par rapport au référentiel galiléen du laboratoire. On présente les résultats de l'Eq. 3.17 sous forme matricielle. Il s'agit du point de départ de notre raisonnement et du résultat principal de cette section.

$$\partial_t \begin{bmatrix} \tilde{c}_X \\ c_0 \end{bmatrix} = -i \begin{bmatrix} -\Delta & \frac{\Omega}{2} \\ \frac{\Omega}{2} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \tilde{c}_X \\ c_0 \end{bmatrix} \quad (3.19)$$



## 3.2 Variation de la population de l'état excité

Dans la suite on cherche à représenter la variation de la population de l'état excité en fonction des paramètres que nous pouvons expérimentalement modifier. Pour rappel l'objectif est de contrôler l'état quantique  $|\Psi\rangle = c_0 |0\rangle + c_X |X\rangle$  qui représente ici notre qubit.

### 3.2.1 Sphère de Bloch

La matrice densité  $\rho$  représentant l'état  $\Psi$  peut être décomposée dans la base des opérateurs de Pauli. On définit les coefficients de  $\rho$  selon

$$\rho = \begin{bmatrix} \rho_{00} & \rho_{X0} \\ \rho_{0X} & \rho_{XX} \end{bmatrix} \quad (3.20)$$

Pour rappel les matrices de Pauli sont données par,

$$\sigma_x = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix}. \quad (3.21)$$

D'après la définition de  $\langle\sigma\rangle$  on peut écrire :

$$\begin{aligned} \langle\sigma_x\rangle &= \langle\sigma\rangle + \langle\sigma^\dagger\rangle = \tilde{\rho}_{0X} + \tilde{\rho}_{X0}, \\ \langle\sigma_y\rangle &= i\langle\sigma\rangle - i\langle\sigma^\dagger\rangle = i(\tilde{\rho}_{0X} - \tilde{\rho}_{X0}), \\ \langle\sigma_z\rangle &= \tilde{\rho}_{00} - \tilde{\rho}_{XX}. \end{aligned} \quad (3.22)$$

Notons que les populations des états  $|0\rangle$  et  $|X\rangle$  sont indépendants du choix du référentiel.

D'après l'Eq. 3.19 on en déduit

$$\begin{aligned} \partial_t \langle\sigma_x\rangle &= \Delta \langle\sigma_y\rangle, \\ \partial_t \langle\sigma_y\rangle &= -\Delta \langle\sigma_x\rangle - \Omega \langle\sigma_z\rangle, \\ \partial_t \langle\sigma_z\rangle &= \Omega \langle\sigma_y\rangle. \end{aligned} \quad (3.23)$$

On a ainsi défini un vecteur  $\langle\sigma\rangle$  appelé vecteur de Bloch. Le vecteur de Bloch représente l'état quantique du système à deux niveaux dans la sphère unité. On trace la trajectoire du vecteur de Bloch dans la sphère de Bloch en fonction de  $\Omega t$  pour  $\Delta = 0$  et pour  $\Delta \neq 0$  en Fig. 3.1

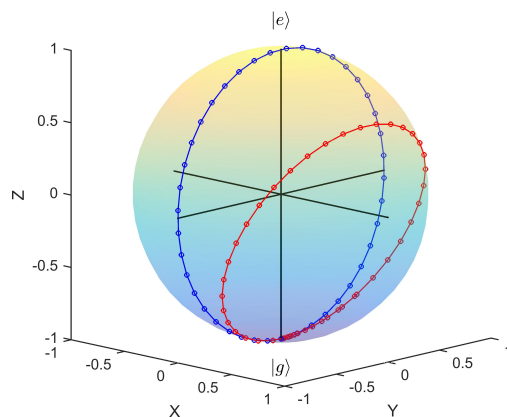


Figure 3.1 Représentation de la trajectoire du vecteur de Bloch pour  $\Delta = 0$  et pour  $\Delta \neq 0$ .

### 3.2.2 Oscillations de Rabi

On s'intéresse ici à la population de l'état excité noté  $P_X$  en fonction de la rotation dans la sphère de Bloch. L'angle de rotation du vecteur de Bloch autour de l'axe  $x$  est donné par  $\Omega t$ . Comme on peut le voir en Fig. 3.2 celle-ci varie en fonction de l'angle de rotation et du detuning  $\Delta$ .

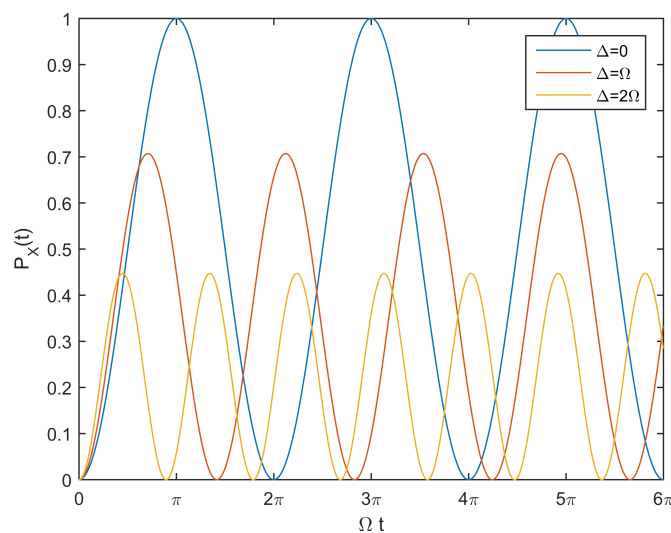


Figure 3.2 Variation de la population de l'état excité en fonction de la rotation  $\Omega t$  pour différentes valeurs de  $\Delta$

On a ici supposé qu'à  $t = 0$  l'atome est dans l'état  $|0\rangle$ . Ainsi on a  $c_0(0) = 1$  et  $c_X(0) = 0$ . La solution générale de l'équation 3.19 est alors donnée par

$$\begin{aligned}
c_0(t) &= e^{i\Delta t/2} \left[ \cos\left(\frac{1}{2}\tilde{\Omega}t\right) - \frac{i\Delta}{\tilde{\Omega}} \sin\left(\frac{1}{2}\tilde{\Omega}t\right) \right] \\
c_X(t) &= -ie^{i\Delta t/2} \frac{\Omega}{\tilde{\Omega}} \sin\left(\frac{1}{2}\tilde{\Omega}t\right)
\end{aligned} \tag{3.24}$$

La population de l'état excité  $P_X(t)$  est alors donnée par  $|\tilde{c}_X(t)|^2$ , soit

$$P_X(t) = \frac{\Omega^2}{\tilde{\Omega}^2} \sin^2\left(\frac{1}{2}\tilde{\Omega}t\right). \tag{3.25}$$

La population de l'état excité dépend de la fréquence de Rabi généralisée  $\tilde{\Omega} = \sqrt{\Omega^2 + \Delta^2}$  et de la durée de l'interaction entre le laser et le système. L'angle de rotation  $\theta$  autour de l'axe  $x$  dans la sphère de Bloch pour un laser pulsé ayant un taux de répétition  $1/\tau_r$ , une durée  $\tau_p$ , et de puissance moyenne  $\bar{P}$  est donnée par

$$\Theta = \sqrt{\frac{\mu^2 \tau_p \tau_r \bar{P}}{cn\epsilon_0 \hbar^2 S}} \sqrt{\frac{2\pi}{\ln 2}}, \tag{3.26}$$

où  $S$  est l'aire du faisceau laser,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide,  $n$  l'indice de réfraction de l'échantillon,  $c$  la vitesse de la lumière et  $\mu$  la force d'oscillateur du système à deux niveaux. Expérimentalement, on fait varier la puissance moyenne d'une impulsion dont la durée est de l'ordre de la centaine de femtosecondes issue d'un laser pulsé dont le taux de répétition est de 80 MHz.

### 3.2.3 Equations de Bloch optiques

Dans ce qui précède, on a considéré que la population de l'état excité était parfaitement contrôlée par l'impulsion laser. En pratique le système est indissociable de son environnement. On modélise cette perturbation par deux paramètres de relaxation. On définit le taux de relaxation longitudinal  $\Gamma$  identique au coefficient de Einstein  $A_{21}$ . En plus de l'émission spontanée on prend en compte la décohérence de notre état quantique. Cette décohérence est représentée par un taux de relaxation transverse  $\gamma_{\perp}$  qui correspond à une variation brutale de la phase de l'état quantique. Ces taux de relaxation nous permettent de définir des temps de cohérence  $T_1$  et  $T_2$ .  $T_1$  est le temps caractéristique de désexcitation radiative, et  $T_2$  le temps de cohérence de phase. On peut alors écrire les équations de Bloch optiques qui décrivent la variation des coefficients de la matrice densité.

$$\begin{aligned}
\partial_t \rho_{XX} &= i \frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{0X} - \tilde{\rho}_{X0}) - \Gamma \rho_{XX} \\
\partial_t \rho_{00} &= -i \frac{\Omega}{2} (\tilde{\rho}_{0X} - \tilde{\rho}_{X0}) + \Gamma \rho_{XX} \\
\partial_t \tilde{\rho}_{0X} &= -(\gamma_{\perp} + i\Delta) \tilde{\rho}_{0X} - i \frac{\Omega}{2} (\rho_{XX} - \rho_{00}) \\
\partial_t \tilde{\rho}_{X0} &= -(\gamma_{\perp} - i\Delta) \tilde{\rho}_{X0} + i \frac{\Omega}{2} (\rho_{XX} - \rho_{00})
\end{aligned} \tag{3.27}$$

On peut aussi utiliser la sphère de Bloch pour obtenir une représentation graphique des équations de Bloch optiques

$$\begin{aligned}
\partial_t \langle \sigma_x \rangle &= \Delta \langle \sigma_y \rangle - \gamma_{\perp} \langle \sigma_x \rangle \\
\partial_t \langle \sigma_y \rangle &= -\Delta \langle \sigma_x \rangle - \Omega \langle \sigma_z \rangle - \langle \sigma_y \rangle \\
\partial_t \langle \sigma_z \rangle &= \Omega \langle \sigma_y \rangle - \Gamma (\langle \sigma_z \rangle + 1)
\end{aligned} \tag{3.28}$$

Pour simplifier la résolution de ces équations différentielles couplées on suppose que  $\Delta = 0$ . On utilise alors les solutions de Torrey pour montrer que

$$\langle \sigma_z(t) \rangle = -1 + \frac{\Omega^2}{\Omega^2 + \Gamma^2/2} \left[ 1 - e^{-(3\Gamma/4)t} \left( \cos \Omega_{\Gamma} t + \frac{3\Gamma}{4\Omega_{\Gamma}} \sin \Omega_{\Gamma} t \right) \right] \tag{3.29}$$

La Fig. 3.3 montre l'évolution de la population de l'état excité pour plusieurs valeurs du rapport  $\Omega/\Gamma$ . Lorsque  $\Gamma$  est non-nul alors la visibilité des oscillations de Rabi diminue.

### 3.3 Excitation résonante d'un système à deux niveaux

L'excitation résonante d'un système à deux niveaux permet de s'affranchir de l'élargissement inhomogène généré par les phénomènes de relaxation non-radiatifs. Il s'agit d'une condition nécessaire au contrôle cohérent d'un système à deux niveaux.

#### 3.3.1 Régime permanent des équations de Bloch optiques

On s'intéresse maintenant au régime permanent des équations de Bloch optiques où  $\partial_t \tilde{\rho} = 0$ . La population de l'état excité dans le régime permanent est donnée par

$$\rho_{XX}(t \rightarrow \infty) = \frac{\Omega^2}{2\gamma_{\perp}\Gamma} \frac{1}{1 + \frac{\Delta^2}{\gamma_{\perp}^2} + \frac{\Omega^2}{\gamma_{\perp}\Gamma}}. \tag{3.30}$$

On peut alors définir le paramètre de saturation  $s$  tel que

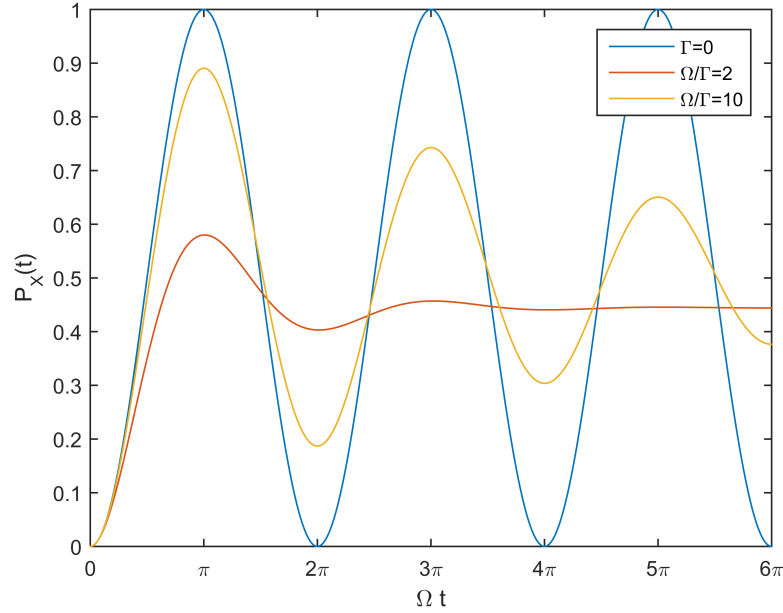


Figure 3.3 Population de l'état excité en fonction de l'angle de rotation  $\Omega_\Gamma t$ . Oscillations de Rabi amorties.

$$s = \frac{\Omega^2/\gamma_\perp\Gamma}{1 + \Delta^2/\gamma_\perp}. \quad (3.31)$$

On peut alors donner la population en fonction du paramètre  $s$

$$\rho_{XX}(t \rightarrow \infty) = \frac{s/2}{1 + s}. \quad (3.32)$$

Comme précédemment on voit que la population de l'état excité dépend du rapport  $\Omega/\Gamma$ .

### 3.3.2 Effet Stark AC

On revient sur l'Eq. 3.19. On a ici défini un hamiltonien global  $\tilde{H}$  tel que

$$\tilde{H} = (\tilde{H}_A + \tilde{H}_{AC}) = \hbar \begin{bmatrix} -\Delta & \Omega/2 \\ \Omega/2 & 0 \end{bmatrix} \quad (3.33)$$

On peut diagonaliser cet Hamiltonien dans la base de vecteurs propres

$$\begin{aligned} |+\rangle &= \sin \theta |0\rangle + \cos \theta |X\rangle, \\ |-\rangle &= \cos \theta |0\rangle - \sin \theta |X\rangle. \end{aligned} \quad (3.34)$$

où on a défini  $\theta$  par  $\tan \theta = -\Omega/\Delta$ . Les valeurs propres sont alors données par

$$E_{\pm} = -\frac{\hbar\Delta}{2} \pm \frac{\hbar\tilde{\Omega}}{2} \quad (3.35)$$

Pour bien comprendre l'effet Stark AC on est ici forcé d'abandonner les simplifications de la première quantification pour exprimer notre état quantique selon les principes physiques de la seconde quantification. L'état quantique du système est alors décrit dans la base couplée photon-atome.

$$\begin{aligned} |+, n\rangle &= \sin \theta |0, n+1\rangle + \cos \theta |X, n\rangle, \\ |-, n\rangle &= \cos \theta |0, n+1\rangle - \sin \theta |X, n\rangle. \end{aligned} \quad (3.36)$$

L'état excité est alors formé d'un exciton et de  $n$  photons, alors que l'état du vide est décrit par 0 excitons et  $n+1$  photons. Ainsi on peut réécrire les vecteurs propres sous la forme de l'Eq. 3.36.

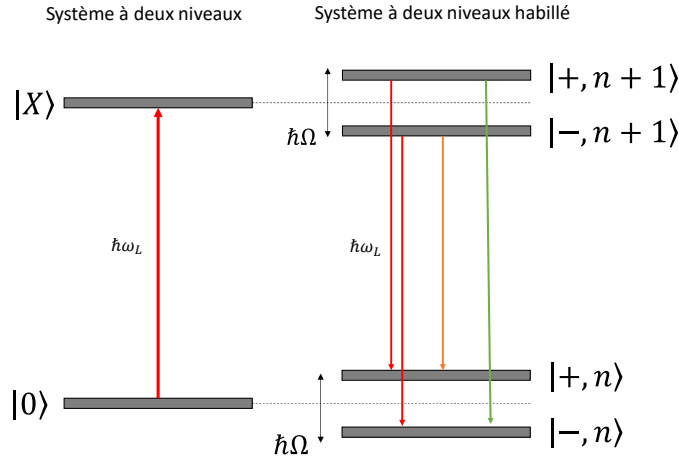


Figure 3.4 Structure fine d'un système à deux niveaux avec et sans couplage. Le couplage entre les photons issus d'une excitation laser résonante et  $|X\rangle$  fait apparaître 2 nouvelles transitions d'énergie  $\hbar\omega_L \pm \frac{\hbar\Omega}{2}$ .

Les énergies propres du système photon-atome sont alors données par

$$E_{\pm} = (n + 1)\hbar\omega_L - \frac{\hbar\Delta}{2} \pm \frac{\hbar\tilde{\Omega}}{2}, \quad (3.37)$$

où  $\omega_L$  est la fréquence du laser. Lorsque l'atome est habillé, la structure fine de l'exciton est modifiée. L'état  $|X\rangle$  est scindé en deux. De même pour l'état  $|0\rangle$ . Le Fig. 3.4 présente le système à deux niveaux, avant et après couplage avec un laser résonant. On observe l'apparition de deux nouvelles transitions aux énergies  $\hbar\omega_L \pm \hbar\Omega$ . Le spectre de photoluminescence sera composé de trois raies qu'on appelle triplet de Mollow [35].

### 3.3.3 Doublet de Autler-Townes

L'observation du triplet de Mollow est un défi expérimental, car il s'agit d'une mesure de photoluminescence résonante où une partie des photons émis sont à la même énergie que les photons du laser. Une autre manière d'observer l'effet Stark AC a été proposée par S. H. Autler et C. H. Townes [36]. On utilise un état témoin dont la population est proportionnelle à la population de l'état excité. On observe alors 2 transitions issues de la désexcitation radiative entre l'état témoin et l'état du vide habillé par le laser résonant.

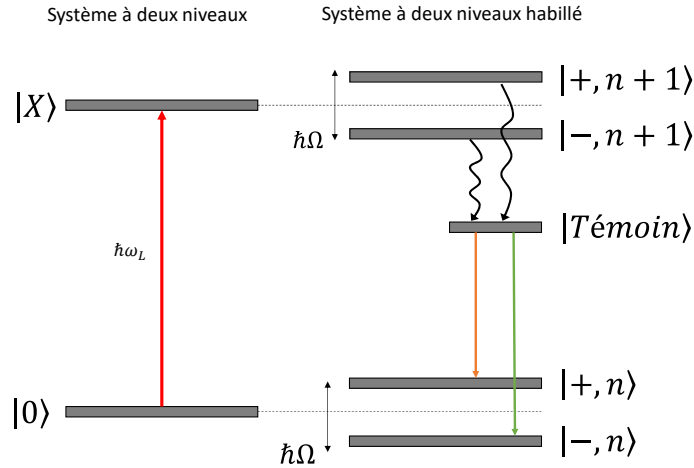


Figure 3.5 Schéma énergétique d'un système à deux niveaux couplé à un niveau témoin. En notant  $E_T$  l'énergie de l'état témoin, on observe à présent deux transitions d'énergie  $E_T \pm \hbar\Omega/2$ .

Cette mesure nous permet d'avoir accès à la fréquence de Rabi  $\Omega$ . Or d'après la définition de la fréquence de Rabi on a

$$\hbar\Omega = \mu E_0 = \mu \sqrt{\frac{2P}{cn\epsilon_0 S}}, \quad (3.38)$$

avec  $P$  la puissance du laser résonant,  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide,  $n$  l'indice optique de l'échantillon,  $\epsilon_0$  la permittivité du vide et  $S$  la surface du faisceau laser. On a alors accès à la valeur de la force d'oscillateur  $\mu$  qui permet de quantifier la capacité de notre émetteur d'interagir avec la lumière.



## CHAPITRE 4 MICRO-PHOTOLUMINESCENCE RÉVOLUE EN POLARISATION

### 4.1 Montage expérimental

Cette section décrit le montage expérimental et les techniques mises en œuvre pour l'étude des centres isoélectroniques de Te dans le ZnSe. La micro-photoluminescence exploite le phénomène d'absorption de la lumière. On photo-génère des paires électrons-trous (cas excitation non-résonante) ou des excitons (cas excitation résonante) qui relaxent vers les états liés de plus basse énergie et émettent des photons en se recombinant. Dans le cas de la micro-photoluminescence, on se limite à l'étude d'un émetteur unique.

Une mesure de micro-photoluminescence nécessite un microscope confocal. On fait l'image d'une fibre optique sur l'échantillon grâce à un objectif de grande ouverture numérique. On détecte seulement les photons issus de la zone éclairée de l'échantillon, en collectant la lumière dans une deuxième fibre optique de même diamètre. L'objectif du microscope est choisi pour qu'il y ait un seul émetteur dans la zone d'étude.

Après avoir décrit en détail le montage expérimental, on s'intéressera en particulier à un certain nombre de techniques spécifiques à notre système. Enfin on présentera les mesures optiques mises en œuvre pour l'étude de notre émetteur.

#### 4.1.1 Microscope confocal

L'excitation provient d'un laser accordable à onde continue (CW) Ti:Sa doublé en fréquence. Il est couplé à une fibre optique monomode de  $3\ \mu\text{m}$  avant d'être dirigé vers le cryostat.

On fait l'image de la « fibre optique d'excitation » sur l'échantillon grâce à une lentille asphérique ayant une ouverture numérique de 0.54. La photoluminescence émise est ensuite collectée selon le même trajet, et on fait l'image de la zone éclairée sur une « fibre optique de détection » avec le même objectif.

Voici une description plus détaillée des aspects importants du montage :

- **Laser CW accordable** : Il y a deux sources laser sur le montage, utilisables simultanément ou alternativement. La première provient d'un laser accordable (300 nm-600 nm) à onde continue (CW) Ti:Sa doublé en fréquence de marque Msquared. Le contrôle actif de l'énergie du laser par un « wavemeter » de marque HighFinesse permet une précision de l'ordre de  $0.6\ \mu\text{eV}$  pour une largeur spectrale de 50 kHz. Ce laser

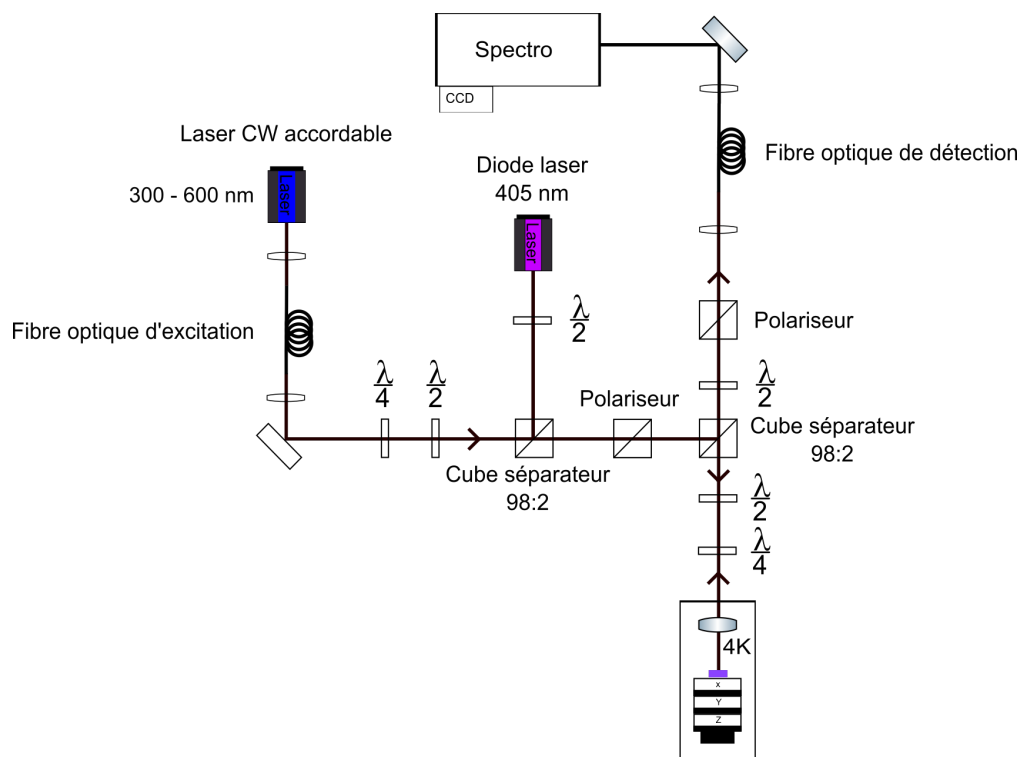


Figure 4.1 Montage expérimental. Microscope confocal qui permet des mesures de micro-photoluminescence résonante sur une molécule unique de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ .

est couplé à une fibre optique monomode de  $3\ \mu\text{m}$  avant d'être dirigé vers le cryostat. La polarisation en sortie de la fibre optique est elliptique. Elle est corrigée grâce à une lame quart d'onde pour obtenir une polarisation linéaire.

- **Diode laser** : La deuxième excitation laser provient d'une diode laser à 405 nm couplée à une fibre optique. Elle est injectée dans le montage grâce à un séparateur de rayon qui permet de superposer les deux excitations laser.
- **Puissance** : La puissance de l'excitation est contrôlée par une lame demi-onde placée devant un polariseur. On peut contrôler indépendamment la puissance du laser accordable et celle de la diode laser à 405 nm.
- **Cubes polariseurs** : Deux cubes polariseurs permettent de séparer l'excitation laser de la photoluminescence. Une lame demi-onde permet de contrôler finement l'angle entre les deux polariseurs. On peut notamment réaliser une détection en polarisation croisée (angle de  $90^\circ$ ) ou en polarisation directe (angle de  $0^\circ$ ).
- **Contrôle de la polarisation** : On contrôle la polarisation de la lumière à l'entrée du cryostat grâce à une lame demi-onde.
- **Localisation d'un émetteur** : L'échantillon est placé sur une colonne de position-

neurs piézoélectriques qui permet un ajustement de la zone de l'échantillon étudié inférieur au nanomètre. Grâce à ces positionneurs on peut placer une molécule de  $\text{Te}_2$  au centre du faisceau issu de la source laser.

- **Cryostat** : L'échantillon est maintenu à une température de 6.9 K dans un cryostat à hélium liquide capable de refroidir l'échantillon jusqu'à 4.2 K.
- **Système de détection** : La lumière issue de la fibre optique de détection est dirigée vers un spectromètre ayant un pouvoir de résolution de 45  $\mu\text{eV}$ , puis vers le détecteur CCD d'une caméra à grande efficacité quantique.

#### 4.1.2 Stabilité du montage

La stabilité de montage dans le temps est une condition nécessaire à la réalisation de nos mesures. L'alignement du faisceau laser sur la paire de  $\text{Te}_2$  permet de favoriser l'absorption des photons issus de la source laser, et de maximiser la détection des photons émis par photoluminescence. Ce centrage requiert une précision supérieure au micromètre (typiquement 1/10  $\mu\text{m}$ ). Pour atteindre cette spécification, on a identifié les points faibles du montage. Il s'agit à la fois d'être capable d'atteindre la précision requise, mais aussi de réduire suffisamment la dérive temporelle de l'alignement pour permettre de mener l'étude complète d'un émetteur.

- **Positionnement de l'échantillon** : on a vu qu'une colonne de positionneurs piézoélectriques permettent de positionner une molécule de  $\text{Te}_2$  au centre du faisceau laser d'excitation. Nos positionneurs ont un pas minimum inférieur au nanomètre qui ne limite pas la précision de l'alignement. En revanche la mesure de la photoluminescence au cours du temps démontre une dérive de la position. On observe une diminution de l'intensité de la photoluminescence sur des temps de l'ordre de 24 h. Pour compenser cette dérive, on détermine un critère qui définit un alignement optimal, puis on vérifie qu'il reste constant, en déplaçant l'échantillon si besoin.
- **Positionnement de la fibre optique de détection** : la position de la fibre optique de détection par rapport à la photoluminescence issue de l'échantillon sortant du cryostat est cruciale pour maximiser le signal. On utilise un positionneur de fibre optique de la marque Elliot-Martoch, dont la précision et la stabilité dans le temps et en température sont suffisantes pour pouvoir étudier la même molécule de  $\text{Te}_2$  pendant au moins 1 mois sans intervention sur la position de cette fibre.

## 4.2 Détection en polarisation croisée

Les mesures en excitation résonante ou quasi-résonante nécessitent d'observer un signal d'intérêt à la même longueur d'onde que l'excitation laser. Il s'agit d'un défi expérimental, car le photon unique émis par l'émetteur se retrouve noyé avec les photons issus du laser et leurs réflexions et diffusions sur les éléments optiques du montage. Ces effets parasites génèrent un signal dont le bruit de grenaille peut facilement excéder le signal d'intérêt. De plus, la diffusion augmente la diffusion angulaire du faisceau, et ainsi augmente artificiellement les largeurs spectrales mesurées.

Pour contourner ce problème, on utilise un schéma de détection croisée. La lumière issue de la fibre optique d'excitation passe au travers d'un polariseur avant d'être dirigée vers l'échantillon. Ensuite on collecte la photoluminescence après un deuxième polariseur identique au premier, mais polarisé orthogonalement. Ainsi on obtient un facteur de réjection laser de l'ordre de  $10^3$ .

Cette réjection est limitée par les optiques dans le cryostat qui engendrent de la biréfringence et limitent la réjection laser. Pour compenser ce phénomène on utilise un couple de lames d'onde  $\lambda/2 - \lambda/4$  dont l'angle est contrôlé par des rotateurs motorisés ayant une précision de l'ordre de  $0.02^\circ$ . Cette méthode nous permet d'obtenir une réjection laser de l'ordre de  $10^5$ .

## 4.3 Identification d'un émetteur quantique

La localisation et l'identification d'une molécule de  $\text{Te}_2$  se fait par photoluminescence non-résonante (405 nm, 432 nm, ou 442 nm). La photocréation de porteurs libres dans le ZnSe permet, après relaxation, à la molécule de  $\text{Te}_2$  de lier un exciton, un biexciton ou un trion. Cette relaxation n'est pas cohérente et ne préserve pas la population de spins. On détecte ensuite la photoluminescence dont la polarisation est orthogonale à la polarisation de la lumière incidente (cas détection « croisée »).

Comme on peut le voir sur la Fig. 4.2 la transition  $|Y\rangle$  polarisée  $\pi_Y$  est à plus haute énergie alors que la transition  $|X\rangle$  polarisée  $\pi_X$  est à plus basse énergie. L'écart en énergie entre les deux raies (de 50  $\mu\text{eV}$  à 500  $\mu\text{eV}$  selon l'émetteur) correspond à la constante de structure fine.

Grâce à la lame d'onde  $\lambda/2$  située à l'entrée du cryostat, on peut contrôler la polarisation de l'excitation. Dans le cas de l'excitation non-résonante et grâce à la méthode de détection en polarisation croisée, on peut ainsi sélectionner la polarisation de la photoluminescence qu'on mesure. Comme on peut le voir sur la Fig. 2.5, une carte en polarisation permet d'identifier la nature de l'émetteur, et donne accès à l'énergie des différentes transitions.

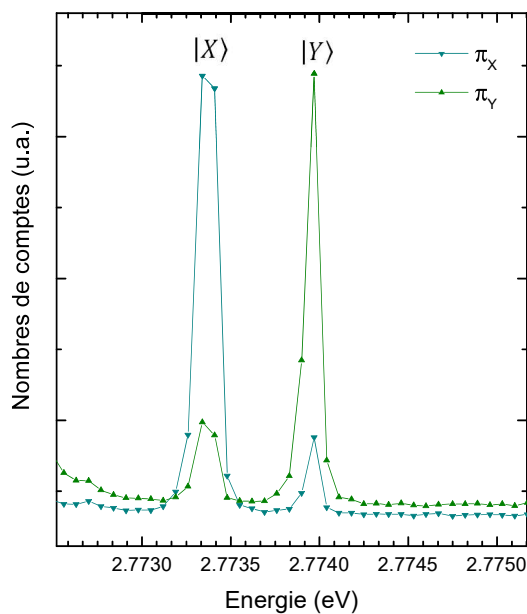


Figure 4.2 Photoluminescence non-résonante d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe.

L'identification de la nature (exciton, biexciton, trion) ainsi que de l'énergie de l'émetteur est le premier pas vers la réalisation de l'excitation résonante.

#### 4.4 Excitation résonante

Dans cette section, on décrit une méthode permettant de contourner les difficultés liées à l'excitation résonante.

On a vu précédemment que la configuration « détection croisée » permet de séparer les photons issus du laser de ceux issus de la photoluminescence résonante de notre émetteur. Les lames d'ondes n'étant pas parfaitement achromatiques, le retard accumulé dépend de la longueur d'onde. Donc la réjection des photons issus du laser varie lorsque l'énergie de l'excitation laser est modifiée. Si on maximise la réjection laser pour l'excitation résonante, alors lorsqu'on varie l'énergie d'excitation laser on va modifier la qualité de la réjection laser et on ne pourra pas déterminer si la variation de l'intensité mesurée est liée au montage expérimental ou à l'effet physique recherché.

Pour contourner ce problème, on utilise un état témoin dont la population est proportionnelle à la population de l'état excité en résonance. Dans le cas d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  on excite en résonance l'état  $|Y\rangle$  avec un laser polarisé  $\pi_Y$ , et on détecte la photoluminescence issue de la transition  $|X\rangle$  polarisée  $\pi_X$ .

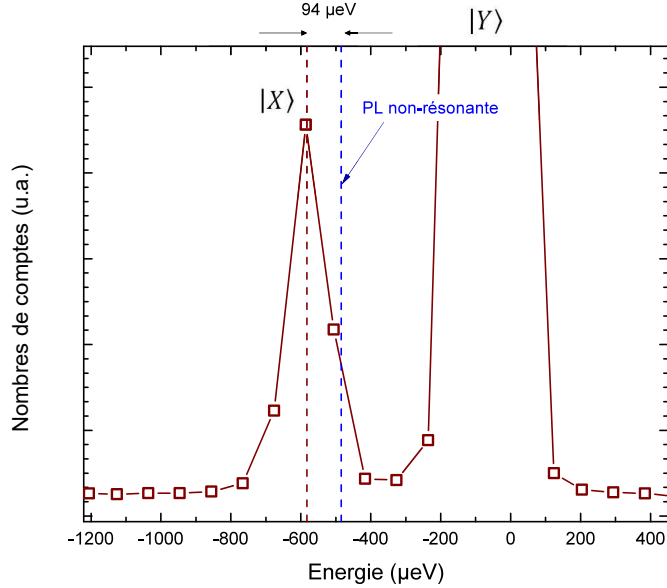


Figure 4.3 Excitation résonante d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ . On excite la transition  $|Y\rangle$  avec un laser CW quasi-résonant (on définit  $E = 0 \mu\text{eV}$  comme l'énergie d'émission de la photoluminescence  $|Y\rangle$  en condition d'excitation non-résonante) et on détecte la photoluminescence issue de la transition  $|X\rangle$ .

Cette mesure est présentée en Fig. 4.3. La raie d'énergie  $0 \mu\text{eV}$  correspond au laser quasi-résonant avec la transition  $|Y\rangle$ . La raie fine à  $-590 \mu\text{eV}$  correspond à la transition  $|X\rangle$  dont la population est proportionnelle à la population de l'état  $|Y\rangle$ . À partir de ce spectre, on peut faire varier l'énergie ou la puissance du laser d'excitation.

**Spectre d'absorption** L'absorption de la transition est mesurée grâce à un état témoin. On mesure l'intensité de la photoluminescence de  $|X\rangle$  en fonction de l'énergie du laser quasi-résonant avec  $|Y\rangle$ . Le maximum d'intensité est atteint lorsque le laser est résonant avec  $|Y\rangle$ . Cette mesure s'apparente à une mesure de photoluminescence excitation.

**Doublet de Autler-Townes** Le couplage entre le laser et l'état  $|Y\rangle$  se traduit par l'observation d'un doublet appelé « Doublet de Autler-Townes ». La largeur de la raie  $|X\rangle$  est

mesurée en fonction de la puissance d'excitation du laser résonant avec  $|Y\rangle$ . Dans le cas où  $\hbar\Omega$  est supérieur à la résolution de notre spectromètre alors on observe deux raies fines.

Sur la Fig. 4.3 on remarque que l'énergie de  $|X\rangle$  est inférieure à l'énergie d'émission de la photoluminescence non-résonante. Ce décalage spectral vers le rouge est lié à l'environnement électrostatique de l'émetteur. Dans la suite on s'efforce de mieux comprendre ce phénomène pour le contrôler.

## CHAPITRE 5 STABILISATION DE L'ENVIRONNEMENT ÉLECTRONIQUE D'UNE MOLÉCULE DE $\text{Te}_2$ DANS LE $\text{ZnSe}$

Les fluctuations de l'environnement électrostatique d'une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  rendent impossible l'étude de la photoluminescence résonante d'un exciton lié. Dans cette section on s'intéresse à l'effet d'un laser non-résonant sur le spectre d'absorption d'une transition d'un exciton lié. Il existe deux régimes distincts : à très faible puissance d'excitation non-résonante on permet la recombinaison radiative des charges qui ont été accumulées par l'excitation résonante ; pour des puissances d'excitation plus fortes, le nombre de paires électron-trou photocrées est grand et entraîne le piégeage d'excitons dans le voisinage de l'émetteur à l'étude. Entre ces deux extrêmes, il existe un régime particulier qui correspond à une décharge totale de l'environnement. Ce régime se traduit par une largeur spectrale minimale. On verra que pour l'atteindre il faut compenser le taux de charge de l'environnement, qui dépend lui-même de l'intensité de l'excitation résonante.

### 5.1 Calcul du décalage spectral d'une particule liée soumise à un champ électrique

On a vu précédemment qu'une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  permet de piéger un exciton. Le temps de vie radiatif de cet exciton est de l'ordre de 50 ps. Durant ce temps noté  $T_1$ , n'étant pas isolé de son environnement, l'exciton peut interagir avec des charges électriques liées à des défauts présents dans le matériau hôte ( $\text{ZnSe}$ ) ou le substrat ( $\text{GaAs}$ ). Ces interactions se traduisent par une réduction du temps de cohérence de phase  $T_2$  de l'exciton, mais aussi par un décalage spectral de son énergie d'émission.

Nous commençons par présenter l'effet d'un champ électrique sur l'énergie de l'atome d'hydrogène. Ce modèle simple peut facilement être adapté à l'étude d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ , car la fonction d'onde du trou a une extension spatiale très inférieure à celle de l'électron, prenant ainsi le rôle du proton, et l'électron est lié au trou par l'interaction de Coulomb. Nous présentons ensuite les mesures expérimentales qui décrivent ce phénomène.

#### 5.1.1 Modèle de l'atome d'hydrogène

La théorie des perturbations permet de calculer le décalage spectral induit par un champ sur l'énergie de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène. Ce calcul permet de donner une



bonne approximation du décalage spectral créé par une distribution quelconque de charges isolées sur un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ .

La symétrie centrale du problème ne nous impose aucune condition sur le choix des axes cartésiens. On peut donc écrire la perturbation selon l'axe  $z$ ,

$$H_1 = e\mathcal{E}z. \quad (5.1)$$

Cette perturbation doit être négligeable devant l'énergie de liaison. Par symétrie on peut montrer qu'à l'ordre 1 des perturbations le décalage spectral est nul

$$E_{nlm}^{(1)} = e\mathcal{E} \langle \phi_{nlm} | z | \phi_{nlm} \rangle = 0. \quad (5.2)$$

Le deuxième ordre des perturbations donne

$$E_{100}^{(2)} = e^2 \mathcal{E}^2 \sum_{nlm \neq 100} \frac{|\langle \phi_{nlm} | z | \phi_{100} \rangle|^2}{E_1^{(0)} - E_n^{(0)}} \quad (5.3)$$

Sachant que  $z = r \cos(\Theta)$ , et avec la définition de l'harmonique sphérique  $Y_{00}$

$$Y_{00} \cos(\Theta) = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} \sqrt{\frac{4\pi}{3}} Y_{10}, \quad (5.4)$$

on simplifie l'élément de matrice de  $z$  entre l'état fondamental et les états de plus haute énergie selon

$$\langle \phi_{nlm} | z | \phi_{100} \rangle = \frac{1}{\sqrt{3}} \int r^3 dr R_{nl}^* R_{10} \int d\Omega Y_{lm}^* Y_{10}. \quad (5.5)$$

Sachant que les harmoniques sphériques sont mutuellement orthogonales, on peut donc se limiter à

$$\langle \phi_{nlm} | z | \phi_{100} \rangle = \frac{\delta_{l1} \delta_{m0}}{\sqrt{3}} \int r^3 dr R_{nl}^* R_{10}. \quad (5.6)$$

En sommant sur les valeurs normalisées de  $R_{nl}$ , on peut finalement montrer que

$$|\langle \phi_{nlm} | z | \phi_{100} \rangle|^2 = a_0^2 \delta_{l1} \delta_{m0} \frac{2^8 n^7 (n-1)^{2n-5}}{3(n+1)^{2n+5}}. \quad (5.7)$$

Or  $E_n^{(0)} = -e^2/2(4\pi\epsilon_0)a_0n^2$ , ainsi on obtient l'Eq. 5.8, ou  $f(n)$  est défini dans l'Eq. 5.7.

$$E_{100}^{(2)} = -2a_0^3\mathcal{E}^2 \sum_n \frac{n^2 f(n)}{n^2 - 1} \quad (5.8)$$

Après calcul numérique de la somme sur  $n$ , le décalage spectral  $\Delta E$  en fonction du rayon de Bohr  $a_0$  et du champ  $\mathcal{E}$  est donné par

$$\Delta E = -2.25(4\pi\epsilon_0)a_0^3\mathcal{E}^2 \quad (5.9)$$

$\Delta E$  est négatif quelque soit le signe du champ électrique  $\mathcal{E}$ . On observe donc un décalage vers le rouge lorsque le champ électrique augmente.

### 5.1.2 Application du modèle à un exciton lié

Le modèle de l'atome d'hydrogène est bien adapté à la description d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe. Il faut et il suffit de remplacer le rayon de Bohr  $a_0$  de l'atome d'hydrogène par le rayon de Bohr de l'exciton  $a_0^*$ . Pour cela on utilise le rayon de Bohr corrigé par la masse effective de l'électron  $m^*$ , et la constante diélectrique effective  $\epsilon_r$

$$a_0^* = \frac{\epsilon_r}{m^*} a_0. \quad (5.10)$$

De plus la permittivité diélectrique du vide est corrigée grâce à la constante diélectrique effective pour donner,

$$\Delta E = -2.25(4\pi\epsilon_0) \left( \frac{\epsilon_r}{m^*} a_0 \right)^3 \left( \frac{q}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r R^2} \right)^2, \quad (5.11)$$

où  $q$  est la charge électrique totale et  $R$  est la distance entre le centre de symétrie de la molécule de  $\text{Te}_2$  et le barycentre de la distribution de charges.

Ainsi, même sans être capable de localiser les charges ou de les dénombrer, l'effet d'un champ électrique  $\mathcal{E}$  sur l'énergie d'émission d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe peut être évalué numériquement. La localisation précise de ces charges [30, 31] est déjà difficile pour des structures macroscopiques, et nécessite un grand nombre d'approximations qui ne servent pas notre propos. On cherche ici à caractériser l'effet de l'environnement électrostatique sur les propriétés quantiques de notre émetteur. L'ajout d'un laser non-résonant permet de contrôler les fluctuations de l'environnement et de réduire le décalage spectral. La réduction des fluctuations de l'environnement a un effet sur le temps de cohérence  $T_2$  de notre émetteur.

L'objectif de cette section est d'analyser ce phénomène pour définir les conditions idéales permettant d'utiliser un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  comme un émetteur quantique à fort potentiel.

## 5.2 Décalage spectral de l'énergie d'émission d'un exciton lié à une paire de $\text{Te}_2$ dans le ZnSe

Des mesures préliminaires de photoluminescence résonante montrent que le maximum d'absorption de l'état  $|Y\rangle$  et l'énergie d'émission de la photoluminescence de l'état témoin  $|X\rangle$  sont différents des énergies d'émission mesurées en photoluminescence non-résonante. Le décalage spectral se fait vers les basses énergies.

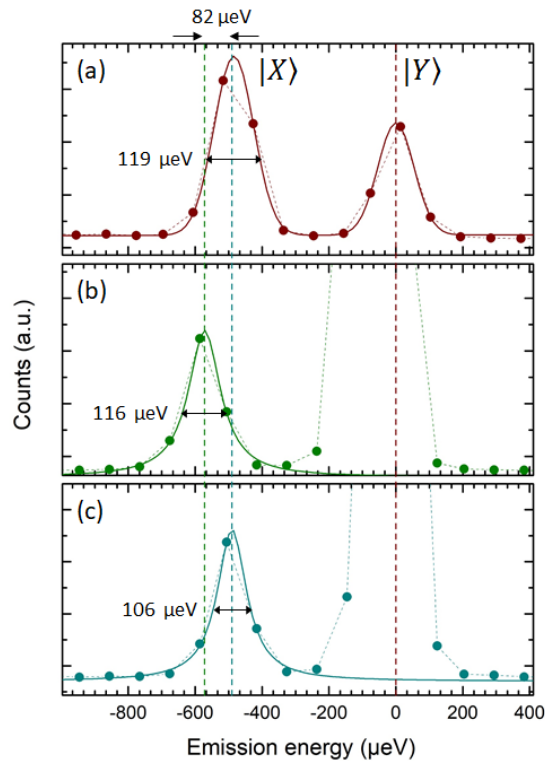


Figure 5.1 Photoluminescence d'une molécule unique de  $\text{Te}_2$  excitée (a) à l'énergie des excitons libres dans le ZnSe, (b) en résonance avec  $|Y\rangle$ , et (c) en résonance avec  $|Y\rangle$  en ajoutant un laser de faible puissance à 405 nm. Les données sont modélisées (lignes pleines) par des fonctions gaussiennes en (a) et Lorentziennes en (b) et (c).

Les caractéristiques de l'émission de la photoluminescence d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dépendent fortement des conditions d'excitation. L'énergie d'émission varie en fonction

de la puissance et de la longueur d'onde de l'excitation. L'intensité de la photoluminescence dépend quant à elle à la fois de la puissance et de l'énergie d'excitation.

### 5.2.1 Photoluminescence non-résonante

La Fig. 5.1(a) présente le spectre de photoluminescence lorsqu'on excite l'échantillon avec un laser CW focalisé sur la monocouche dopée au Te à 2.805 eV (442 nm), ce qui correspond à l'énergie des excitons libres (trous lourds) du ZnSe. Les excitons libres ainsi photocréés sont piégés par la molécule de  $\text{Te}_2$  et on mesure le spectre de photoluminescence caractéristique d'un exciton de symétrie  $C_{2v}$  dans le plan [29]. Les deux transitions de l'exciton  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  sont identifiables. Pour cet émetteur en particulier l'énergie de l'émission de  $|Y\rangle$  est à 2.777 08 eV. Dans ces conditions d'excitation les raies sont bien représentées par de gaussiennes de largeur 119  $\mu\text{eV}$ . Cette largeur est supérieure à celle attendue pour un émetteur ayant un temps de vie de l'ordre de 50 ps qui serait de 12  $\mu\text{eV}$ . Le spectre observé est identique, quelque soit l'excitation non-résonante (405 nm, 432 nm ou 442 nm). Dans ces conditions la largeur spectrale et l'énergie ne varient pas en fonction de la puissance d'excitation.

### 5.2.2 Photoluminescence résonante

Dans la suite l'énergie d'émission de  $|Y\rangle$  mesurée en excitation non-résonante est choisie comme énergie de référence ( $E = 0$  eV). On ajuste l'énergie du laser pour exciter en résonance l'état  $|Y\rangle$ . La puissance d'excitation est fixée à 4  $\mu\text{W}$  pour obtenir un bon rapport signal sur bruit et limiter la photogénération de charges dans l'environnement de l'émetteur.

Comme on peut le voir sur la Fig. 5.1(b), l'utilisation d'un laser résonant avec l'état  $|Y\rangle$  décale la photoluminescence issue de  $|X\rangle$  de 82  $\mu\text{eV}$  vers le rouge. De plus le maximum d'intensité pour  $|X\rangle$  n'est pas atteint pour  $E_{\text{Laser}} = 0$   $\mu\text{eV}$ . Dans ces conditions la raie peut être modélisée par une lorentzienne. La largeur spectrale est de 116  $\mu\text{eV}$ , ce qui est comparable à ce qui a été mesuré pour une excitation non-résonante.

Comme cela a été démontré pour les boîtes quantiques [9, 30], l'ajout d'un laser non-résonant (ici 405 nm) à très faible puissance (ici 8 nW) permet de ramener l'énergie d'émission à l'énergie mesurée en photoluminescence non-résonante comme on peut le voir sur la figure 5.1(c). On observe de plus une légère diminution de la largeur spectrale qui est dans ces conditions de 106  $\mu\text{eV}$ .

La résolution de notre système ne nous permet pas de mesurer de manière satisfaisante la largeur spectrale en émission, car 1 pixel correspond à 90  $\mu\text{eV}$ . Dans la suite, on profite de la petite largeur de raie de notre laser CW dont la fréquence est stabilisée de manière active.

Associé à une cavité de référence qui permet d'obtenir une largeur spectrale inférieure à 50 kHz, on atteint une précision supérieure à  $0.6 \mu\text{eV}$  sur l'énergie de l'excitation laser. On s'intéresse à l'intensité de la photoluminescence de l'état témoin  $|X\rangle$  en fonction de l'énergie de l'excitation laser en résonance avec l'état  $|Y\rangle$ . Cette mesure s'apparente à une mesure de « photoluminescence-excitation » (PLE). Un schéma de la stratégie de la mesure est présenté en Fig.

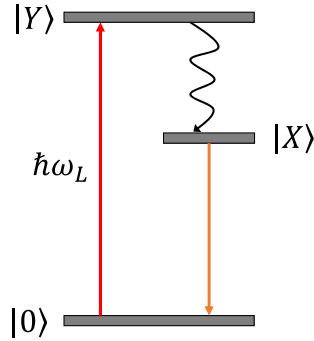


Figure 5.2 Schéma de la stratégie de mesure de la photoluminescence résonante de la transition  $|Y\rangle$ .

### 5.3 Régime d'excitation non-résonante très faible

Dans le régime d'excitation non-résonante très faible, la puissance du laser à 405 nm est très inférieure à celle nécessaire à l'observation de photoluminescence non-résonante. Ainsi la photoluminescence issue de  $|X\rangle$  provient seulement de l'excitation résonante de  $|Y\rangle$ . On évalue l'absorption de  $|Y\rangle$  en intégrant le signal issu de la photoluminescence de  $|X\rangle$  en fonction de l'énergie du laser résonant. On répète ensuite cette mesure pour différentes puissances d'excitation non-résonante.

La figure 5.3 montre que sans excitation non-résonante (panneau du bas), la raie d'absorption est lorentzienne, mais le maximum d'absorption est atteint pour une énergie du laser résonant de  $-86.3 \mu\text{eV}$ , et la largeur spectrale de  $65 \mu\text{eV}$  est environ 5 fois supérieure à ce que l'on attend d'après le temps de vie radiatif de notre émetteur. Cela indique la présence de fluctuations dans l'environnement électrostatique de la molécule de  $\text{Te}_2$ . Le temps caractéristique de ces fluctuations est très petit devant le temps nécessaire à réaliser un spectre (environ 10 min).

Le spectre d'absorption de  $|Y\rangle$  varie fortement lorsqu'on augmente la puissance d'excitation non-résonante. Déjà pour une excitation non-résonante de  $0.5 \text{ nW}$  le spectre d'absorption n'est

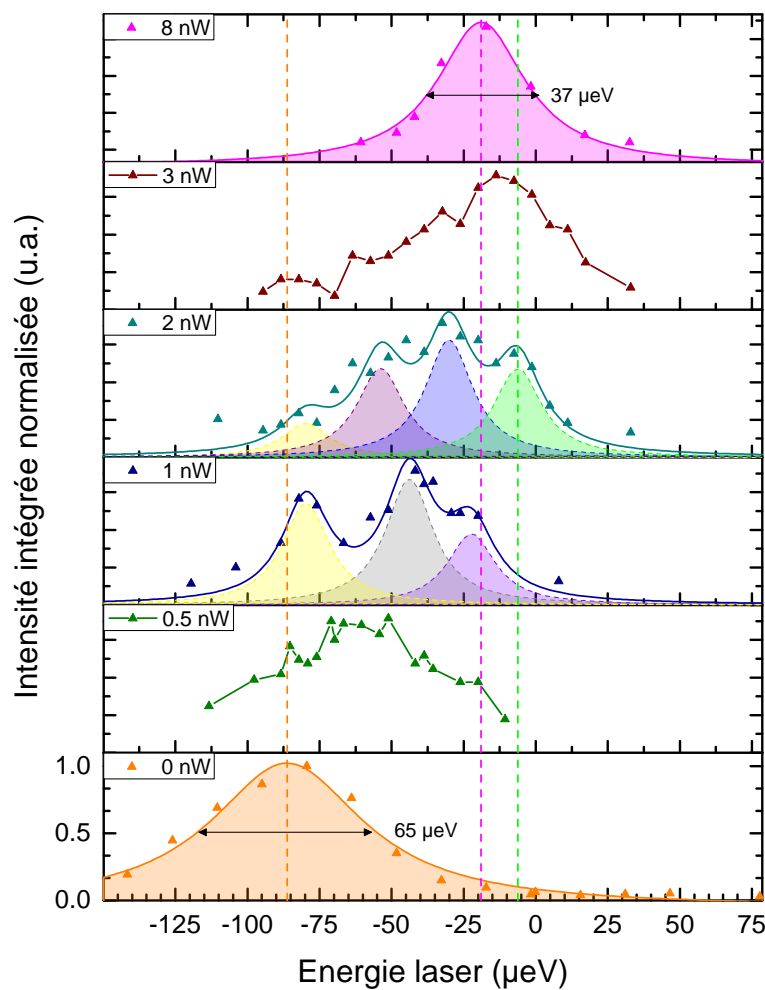


Figure 5.3 Absorption d'un émetteur unique de  $\text{Te}_2$  dans le régime d'excitation non-résonante très faible. Varier l'excitation non-résonante de 0 nW à 8 nW modifie significativement l'absorption de  $|Y\rangle$  : à faible énergie (0 nW) l'absorption est une lorentzienne large. Pour des puissance plus grandes (0.5 nW) à 3 nW on observe plusieurs raies d'absorption fines (15  $\mu\text{eV}$ ). Finalement pour une excitation de 8 nW on retrouve une lorentzienne relativement étroite. Cette évolution résulte de l'interaction entre l'exciton lié à la molécule de  $\text{Te}_2$  et son environnement électro-statique.

plus une lorentzienne. Lorsqu'on augmente la puissance de l'excitation non-résonante à 1 nW, on peut alors identifier plusieurs raies d'absorption d'une largeur d'environ  $15 \mu\text{eV}$ , indiquant que la largeur de raie intrinsèque est inférieure à  $15 \mu\text{eV}$ . On observe de plus un décalage spectral progressif vers le bleu. On retrouve un spectre d'absorption de forme lorentzienne pour une excitation non-résonante de 8 nW. La largeur de la raie d'absorption est alors de  $37 \mu\text{eV}$ , ce qui est deux fois supérieur à la largeur spectrale attendue pour un temps de vie de 50 ps. Le décalage spectral par rapport à l'énergie d'émission dans des conditions d'excitation non-résonante est alors réduit à seulement  $18.9 \mu\text{eV}$ .

L'énergie de résonance, qui correspond au maximum d'absorption, et la largeur spectrale des raies d'absorption identifiées sont tracées en fonction de la puissance d'excitation non-résonante en Fig. 5.4. La tendance générale est un décalage spectral vers le bleu, qu'on associe à une réduction de l'effet Stark DC des charges de l'environnement sur l'exciton lié à la molécule de  $\text{Te}_2$ . Ainsi l'augmentation de l'excitation non-résonante réduit le nombre de distributions de charges accessibles, favorisant celles les moins chargées.

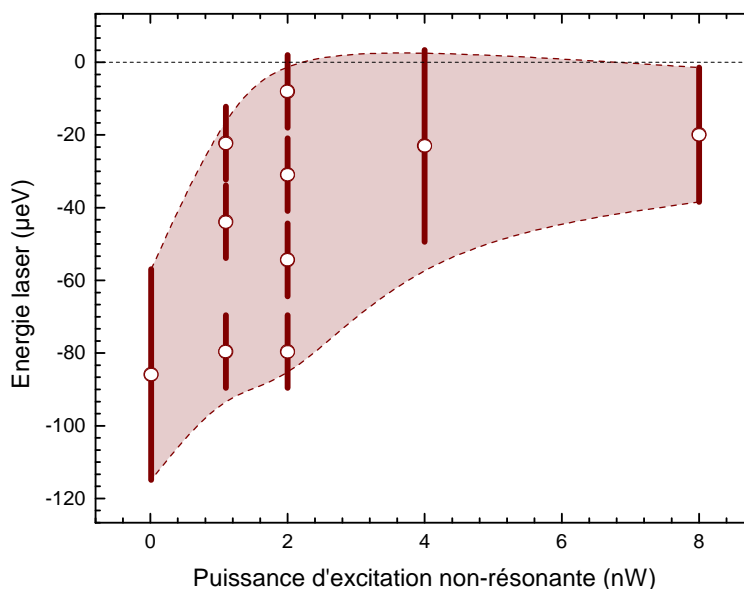


Figure 5.4 Energie de résonance (cercles blancs) et largeur spectrale (barre verticale associée) des spectres présentés en Fig. 5.3.

Pour une excitation non-résonante de 8 nW, la largeur spectrale de  $37 \mu\text{eV}$  nous amène à penser que la raie d'absorption observée est le résultat de la superposition de plusieurs raies plus fines. Nous n'avons donc pas totalement vidé l'environnement des charges accumulées par le laser résonant. Dans la suite on s'intéresse à l'effet d'une excitation non-résonante plus

intense.

#### 5.4 Régime d'excitation non-résonante faible

Dans cette section on s'intéresse à l'effet d'un laser non-résonant sur le spectre d'absorption du  $|Y\rangle$  lorsque la plupart des charges présentes dans l'environnement de la molécule de  $\text{Te}_2$  ont déjà été retirées.

On reproduit la mesure présentée sur la Fig. 5.3 pour une différente molécule de  $\text{Te}_2$ . Comme précédemment, sans excitation non-résonante additionnelle la largeur spectrale est initialement large ( $88 \mu\text{eV}$ ) et décalée vers le rouge de  $95 \mu\text{eV}$ . On présente en Fig. 5.5 l'effet d'une excitation non-résonante sur la largeur spectrale et sur l'énergie de résonance de cet émetteur.

Comme précédemment, on commence par observer un décalage spectral vers les hautes énergies. Cela correspond à la réduction du nombre de charges dans l'environnement de la molécule de  $\text{Te}_2$ . On explore ici des puissances d'excitation plus grandes que ce qui a été vu dans la section précédente. Pour une excitation non-résonante de  $40 \text{ nW}$  on atteint une énergie maximale qui correspond à un décalage vers le bleu de  $17 \mu\text{eV}$ , et une largeur spectrale minimale de  $18 \mu\text{eV}$  qui est proche de ce qui est attendu dans la limite radiative  $12 \mu\text{eV}$ .

Si on augmente encore la puissance d'excitation non-résonante alors on observe un élargissement de la largeur spectrale et un léger décalage spectral vers le rouge de  $10 \mu\text{eV}$ . On associe cet élargissement à une perturbation de l'environnement électrostatique de l'émetteur. Le décalage spectral vers le rouge nous amène à penser que nous avons apporté de nouvelles charges dans l'environnement. On synthétise les résultats de la Fig. 5.3 sur la Fig. 5.5

#### 5.5 Compensation du taux de charge

On a vu dans la section précédente qu'il existe une puissance idéale d'excitation non-résonante pour compenser la charge de l'environnement électrostatique par l'excitation résonante. Dans ce cas, la largeur spectrale est minimale ( $18 \mu\text{eV}$ ), ce qui correspond à un temps de cohérence  $T_2$  maximal. Les mesures de PLE sur l'état  $|Y\rangle$  présentées dans la section précédente ont été menées à puissance constante. Ici on explore l'effet de la variation de la puissance d'excitation résonante sur l'environnement électrostatique de notre émetteur. On verra qu'une augmentation de la puissance d'excitation résonante augmente le taux de charge. Il faut donc augmenter la puissance du laser non-résonant pour décharger le matériau hôte.

On choisit ici de fixer l'énergie du laser résonant à l'énergie d'émission de la photoluminescence de l'état  $|Y\rangle$  mesurée par photoluminescence non-résonante. On se place dans le régime



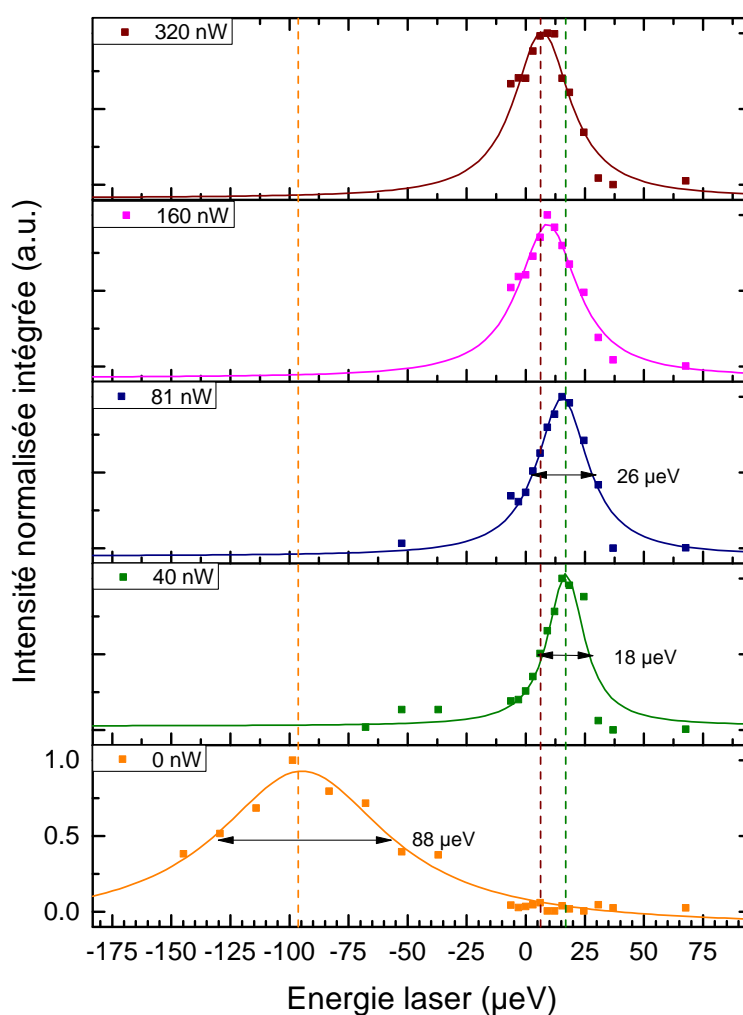


Figure 5.5 Effet d'un laser non-résonant sur le spectre de photoluminescence-excitation d'une molécule de  $\text{Te}_2$  différente de celle présentée en 5.3. On explore ici un régime où l'excitation non-résonante est plus intense. Après un décalage spectral vers le bleu de 112  $\mu\text{eV}$  on observe un décalage vers le rouge de 10  $\mu\text{eV}$ .

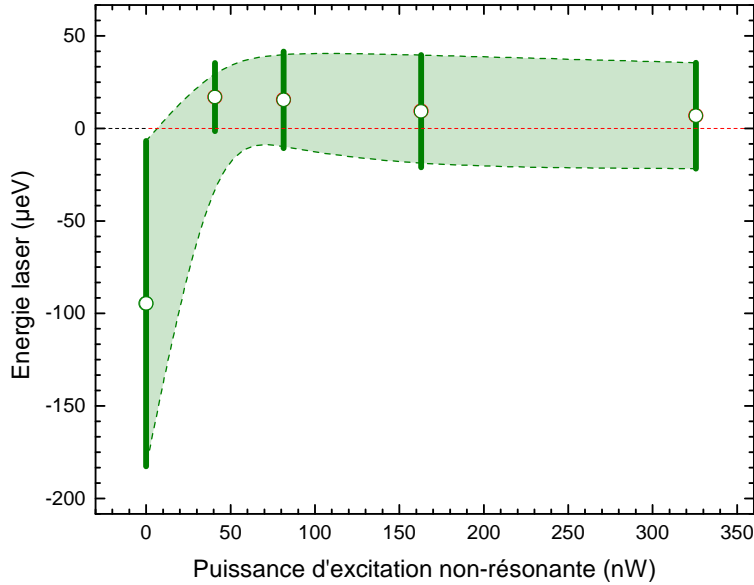


Figure 5.6 Energie de résonance (cercle blanc) et largeur de raie (barre verticale) d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe. En changeant la puissance d'excitation non-résonante de 0 nW à 320 nW le spectre d'absorption passe d'une raie lorentzienne large 0 nW à une transition fine, proche de ce qu'on attend dans la limite radiative.

d'excitation non-résonante « très faible ». On peut ainsi faire varier le décalage spectral de la transition  $|Y\rangle$  de  $-100 \mu\text{eV}$  à  $10 \mu\text{eV}$ . On trace l'intensité de la photoluminescence issue de l'état  $|X\rangle$  en fonction de la puissance d'excitation non-résonante pour différentes puissances d'excitation résonante en Fig. 5.7.

On remarque que la puissance d'excitation non-résonante nécessaire pour atteindre un maximum d'absorption, qui correspond à un décalage spectral de  $|Y\rangle$  nul par rapport à son énergie d'émission en photoluminescence non-résonante, augmente lorsque la puissance d'excitation résonante  $P_{RE}$  augmente. Ainsi pour une excitation résonante de 80 nW le maximum d'absorption est atteint pour une excitation non-résonante de 11.8 nW, alors qu'une excitation résonante de  $2.4 \mu\text{W}$  nécessite une excitation non-résonante de  $1.3 \mu\text{W}$  pour annuler le décalage spectral induit par les charges dans l'environnement de la molécule de  $\text{Te}_2$ .

On observe de plus un élargissement de la largeur de la raie lorsque la puissance d'excitation résonante augmente. Rappelons qu'on mesure ici l'absorption de  $|Y\rangle$  en fonction de la puissance de l'excitation non-résonante, mais que cela revient à mesurer l'absorption en fonction du décalage spectral de  $|Y\rangle$  par rapport à l'énergie d'émission mesurée en photoluminescence non-résonante. En passant d'une excitation résonante de 80 nW à une excitation résonante

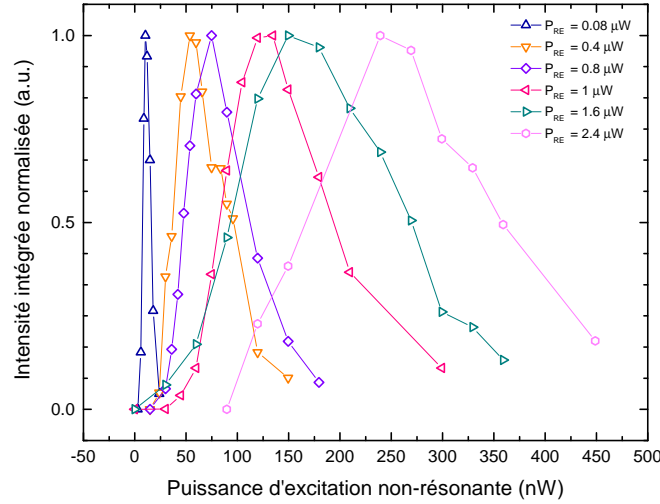


Figure 5.7 Absorption de  $|Y\rangle$  en fonction de la puissance d'excitation non-résonante pour différentes puissances d'excitation résonante. La puissance d'excitation non-résonante nécessaire à atteindre le maximum d'absorption augmente avec la puissance d'excitation résonante.

de  $2.4 \mu\text{W}$  la largeur de raie augmente. Il s'agit là du même effet que celui observé à la figure 5.3. Ici la puissance d'excitation résonante étant plus forte, l'élargissement est observé pour des excitations non-résonantes beaucoup plus intenses.

Enfin on remarque sur la Fig. 5.7 que le minimum de la photoluminescence de  $|X\rangle$  mesuré augmente lorsque la puissance d'excitation augmente. Cela se traduit visuellement par une dissymétrie dans la forme des raies. Cet effet est dû au fait que pour des puissances d'excitation non-résonante de l'ordre de quelques centaines de nanowatts la photoluminescence de  $|X\rangle$  générée par la diode laser à  $405 \text{ nm}$  est non-nulle (Fig. 5.8).

L'augmentation de la puissance du laser non-résonant nécessaire à rétablir un décalage spectral nul par rapport à l'énergie d'émission en photoluminescence non-résonante de  $|Y\rangle$  est associée à l'augmentation du taux de charge de l'environnement électrostatique de la molécule de  $\text{Te}_2$  avec la puissance d'excitation résonante. Cette mesure confirme que les charges piégées proviennent principalement du laser résonant, alors que la décharge par recombinaison radiative est rendue possible par les paires électron-trou photocrées par le laser non-résonant. Sans chercher à trancher, on formule plusieurs hypothèses sur l'origine des charges.

- L'énergie de la bande interdite du GaAs est de l'ordre de  $1.424 \text{ eV}$  ( $870.6 \text{ nm}$ ). À partir d'une certaine puissance, le laser résonant va donc photocréer des paires électron-trou libres dans le substrat, qui peuvent ensuite relaxer vers des défauts présents à

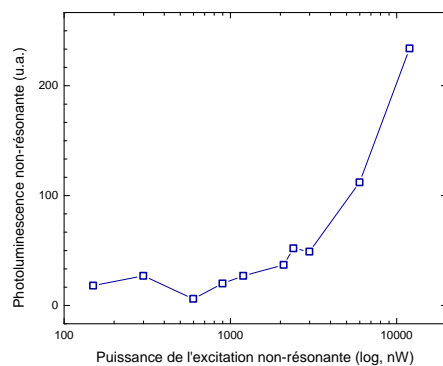


Figure 5.8 Photoluminescence de l'état  $|X\rangle$  issue exclusivement de l'excitation non-résonante de la diode laser à 405 nm.

l'interface entre le GaAs et le ZnSe. Les charges piégées sur ces défauts ont un temps de vie radiatif long, et génèrent un champ électrique.

- Les mesures de photoluminescence non-résonante font état de défauts présents dans le ZnSe [1]. Un défaut unique, spatialement proche et dont l'énergie est comparable à celle de l'exciton lié suffirait à générer un champ électrique, et donc un décalage spectral.

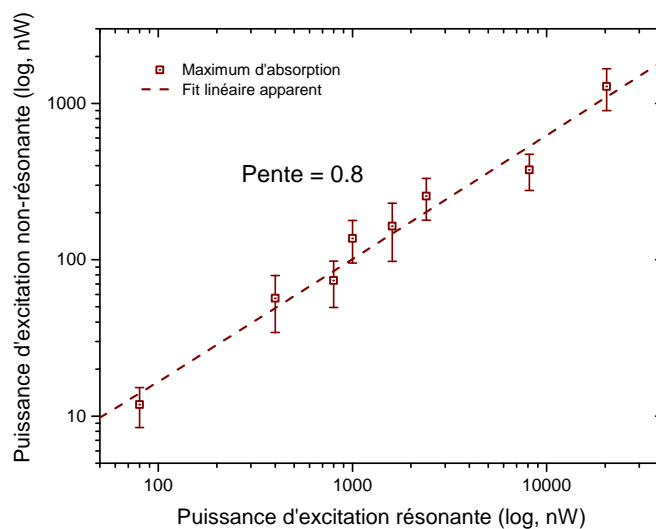


Figure 5.9 Puissance d'excitation non-résonante nécessaire pour obtenir un décalage spectral nul entre l'énergie de résonance de  $|Y\rangle$  et son énergie d'émission en photoluminescence non-résonante en fonction de la puissance d'excitation résonante. La dépendance est sublinéaire.

La puissance d'excitation non-résonante nécessaire pour obtenir le maximum d'absorption

en fonction de la puissance du laser résonant est présentée en Fig. 5.9. On modélise l'évolution par une droite dans un diagramme log-log, ce qui correspond à une fonction puissance sublinéaire.

## 5.6 Modélisation du spectre d'absorption

On a vu que le clignotement des charges piégées dans le voisinage de l'émetteur se traduit par un spectre d'absorption large dans le régime d'excitation non-résonante très faible. Ce spectre large est le résultat de la cohabitation de plusieurs configurations de charge durant le temps de la mesure. On suppose dans la suite que chaque configuration de charge correspond à une raie d'absorption fine à une énergie propre à cette configuration. Le spectre d'absorption est la somme de toutes ces raies.

Pour modéliser ce phénomène on reprend la théorie du « motional narrowing » développée par R. Kubo [37]. On définit les paramètres  $\gamma_c$  et  $\gamma_d$ , comme respectivement les taux de charge et de décharge d'un défaut atomique dans le voisinage de notre émetteur. On ne cherche pas à décrire la nature des défauts. Ils peut s'agir de donneurs, d'accepteurs, ou tout autre forme de défauts pouvant piéger des électrons ou des trous.

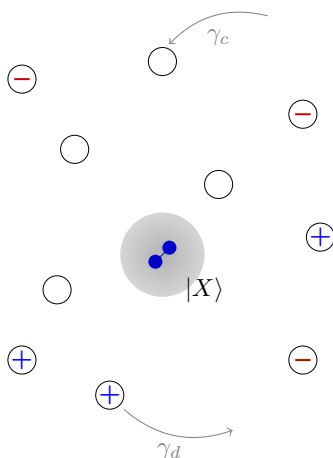


Figure 5.10 Schéma de l'environnement électrostatique d'un exciton  $|X\rangle$  lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ .  $\gamma_c$  et  $\gamma_d$  sont respectivement les taux de charge et de décharge

Notons que d'après l'Eq. 5.11, une charge unique située à quelques nanomètre suffit à générer un décalage spectral supérieur à celui observé expérimentalement. Or le décalage spectral est comparable pour toutes les molécule de  $\text{Te}_2$  étudiées pour un même échantillon. Compte tenu de la sensibilité du phénomène à la distance, il est raisonnable de supposer qu'il s'agit d'un effet d'ensemble.

On suppose donc qu'il existe un grand nombre de charges localisées de manière aléatoires autour de notre émetteur. L'environnement électronique est représenté de manière schématique sur la Fig. 5.10. Le nombre de charges n'est pas déterminé avec précision. Le champ électrique ressenti par l'exciton est la somme des champs. Ajouter ou retirer une charge modifie le champ électrique, et donc le décalage spectral par effet Stark DC.

On représente l'ajout ou le retrait d'une ou plusieurs charges par une marche aléatoire. On se déplace vers les états de haute énergie en déchargeant l'environnement (diminution du décalage spectral vers le rouge), et vers les basses énergie en piégeant une charge isolée. La marche aléatoire est représentée sur la Fig. 5.11.

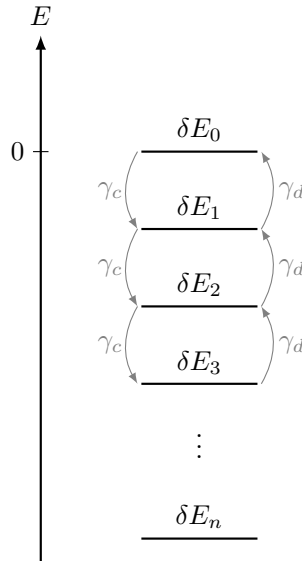


Figure 5.11 Schéma de la marche aléatoire de l'énergie de résonance d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ .

L'état de plus basse énergie correspond à un environnement chargé. On atteint l'état  $\delta E_0$  qui correspond à un environnement complètement déchargé en  $n$  pas, dont la probabilité est décrite par le coefficient  $\gamma_d$ .

Ces hypothèses de base permettent de déterminer l'équation analytique du spectre de la photoluminescence résonante,

$$I(\omega - \omega_0) = \frac{1}{\pi} \text{Re} \left[ \mathbf{P}_0^{(e)} \cdot \frac{1}{i(\omega - \omega_0) \mathbf{1} - \delta \mathbf{\Omega} + \mathbf{D} + \gamma \cdot \mathbf{1}} \cdot \mathbf{S} \right]. \quad (5.12)$$

L'émetteur est décrit par  $\omega_0$  et  $\gamma$ , l'effet de l'environnement sur l'émetteur est donné par  $\delta \mathbf{\Omega}$ , et la marche aléatoire est caractérisée par  $\mathbf{D}$ .

On modélise les données présentées aux Fig. 5.3 et 5.5 grâce à ce modèle. On suppose que les niveaux d'énergie sont séparés par une énergie constante  $|\delta E_i - \delta E_{i+1}| = 15 \mu\text{eV}$ . On suppose qu'il existe approximativement 11 environnements électrostatiques, soit  $n = 11$ . La largeur minimale des raies est donné par leur temps de vie radiatif. Ici on choisit  $\tau = 100 \text{ ps}$  [8]. La Fig. 5.12 présente les résultats de la modélisation. Dans la suite on définit  $A$  et  $S$

$$\begin{aligned} S &= \gamma_c + \gamma_d, \\ A &= \frac{\gamma_c - \gamma_d}{\gamma_+ - \gamma_d}. \end{aligned} \tag{5.13}$$

$A$  représente l'asymétrie entre la charge et la décharge, alors que  $S$  mesure la vitesse à laquelle les fluctuations ont lieu. Le « motional narrowing » apparaît lorsque  $S$  augmente, et pour un  $S$  donné il devient plus efficace lorsque  $|A| \rightarrow 1$ . La fluctuation rapide des charges dans le voisinage de l'émetteur a pour effet de diminuer la largeur de la raie [38].

L'ajustement du modèle sur la Fig. 5.12 permet de déterminer les valeurs de  $A$  et de  $S$  présentés au Tab. 5.1. La description exhaustive de ces données sortent du cadre de ce mémoire. Il est intéressant de remarquer que pour une puissance d'excitation résonante de 40 nW, le paramètre  $S$  est maximal. Ainsi les fluctuations de l'environnement sont grandes. La variance de la distributions est alors de 19  $\mu\text{eV}$ . Il s'agit du phénomène de « motional narrowing ».

P (nW)	$A$	$S$
0	-6.7%	220
0.5	1.2%	230
1	3.8%	240
2	10%	245
3	24%	245
8	26%	250
40	80%	500
160	40%	600

Tableau 5.1 Paramètres  $A$  et  $S$  utilisés pour l'ajustement du modèle sur la Fig. 5.12. L'asymétrie augmente lorsque l'excitation non-résonante varie de 0 nW à 40 nW. Sans excitation résonante l'environnement est chargé est l'asymétrie est de -6.7%. Pour une excitation non-résonante de 40 nW l'asymétrie est maximale (80%), ce qui correspond à un environnement déchargé. Lorsqu'on augmente encore la puissance d'excitation non-résonante l'asymétrie diminue de nouveau.

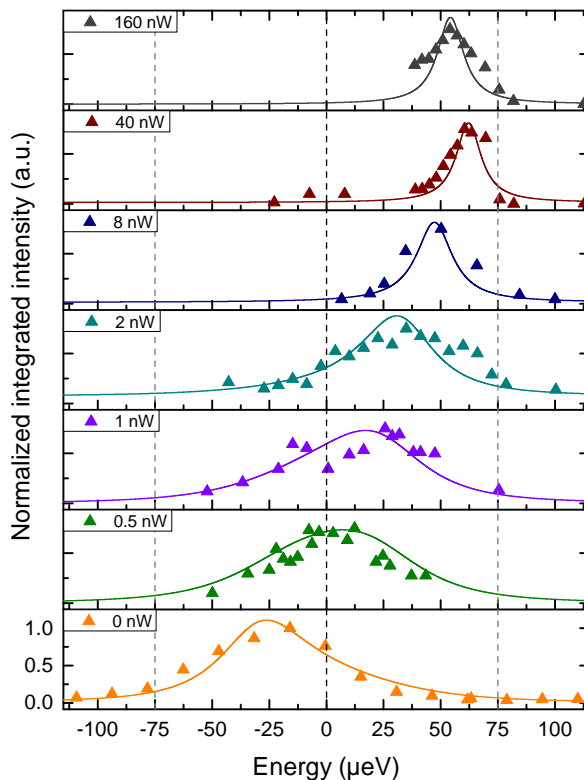


Figure 5.12 Modélisation des spectres d'absorption de la transition  $|Y\rangle$  d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ . Le temps de vie radiatif utilisé pour la modélisation est de 100 ps. L'écart entre deux niveaux d'énergie est fixé à  $12.75 \mu\text{eV}$ . On regroupe ici deux émetteurs différents, l'un étudié à basse puissance (0 nW-8 nW), et l'autre à plus haute puissance (40 nW-160 nW). Cette juxtaposition a nécessité une translation de l'énergie du deuxième émetteur.

Ainsi il existe un régime d'excitation non-résonante particulier qui permet de maximiser les fluctuations de l'environnement électrostatique de l'émetteur et donc de bénéficier du phénomène de « motional narrowing ». Dans ces conditions la largeur spectrale est minimale ( $19 \mu\text{eV}$ ). Il s'agit des conditions idéales pour faire du contrôle cohérent en excitation résonante car les fluctuations sont tellement rapides qu'elles n'ont plus d'effet sur le temps de cohérence.



## CHAPITRE 6    EXCITATION RÉSONANTE D'UN EXCITON LIÉ A UNE MOLÉCULE DE $\text{Te}_2$ DANS LE $\text{ZnSe}$

Dans cette section on présente des résultats préliminaires qui démontrent l'excitation résonante d'une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ . Deux régimes d'excitation sont étudiés. Avec une excitation résonante CW, les résultats expérimentaux sont modélisés par les équations de Bloch optiques (EBO) dans le régime permanent où  $t \rightarrow \infty$ . La très faible largeur de raie du laser CW permet de satisfaire la condition  $\Delta = 0$ . Une excitation pulsée permet d'observer le régime dynamique des EBO, mais dans ce cas on perd de la précision sur l'énergie des transitions électroniques étudiées. C'est en combinant ces deux méthodes de mesure qu'on obtient une image claire de la structure et des propriétés quantiques d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ .

### 6.1    Excitation résonante CW d'un exciton lié

L'utilisation d'un laser à onde continue permet d'explorer de manière très précise ( $< 0.6 \mu\text{eV}$ ) la structure fine d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$ . L'excitation résonante d'une des transitions de l'exciton est décrite par les équations de Bloch optiques dans le régime permanent où  $t \rightarrow \infty$ .

#### 6.1.1    Courbe de saturation

L'étude de l'intensité de la photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation résonante nous renseigne sur les propriétés quantiques de l'émetteur. Comme il a été démontré dans le chapitre 3, on peut définir un paramètre de saturation noté  $s$ . L'intensité de la photoluminescence résonante d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  est donnée par

$$I = \frac{s/2}{1 + s}, \quad (6.1)$$

avec  $s = \frac{\Omega^2/\gamma_{\perp}\Gamma}{1+\Delta^2/\gamma_{\perp}}$ . Dans l'approximation  $\Delta = 0$ , alors  $s = \Omega^2 T_1 T_2$ . Le paramètre de saturation  $s$  s'exprime en fonction du rapport  $I/I_{sat}$  ou réciproquement  $P/P_{sat}$ .

Nos mesures démontrent qu'une variation du paramètre de saturation est observée lorsque l'environnement électronique de l'émetteur a été stabilisé grâce à un laser non-résonant dans le régime d'intensité très faible

L'état  $|Y\rangle$  est excité en résonance avec le laser à onde continue. La Fig. 6.1 présente l'intensité

de la photoluminescence de l'état  $|X\rangle$  en fonction de la puissance du laser résonant.

Comme on l'a vu dans le chapitre 5.1.2, l'excitation résonante d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  entraîne une accumulation de charges dans l'environnement électrostatique de l'émetteur qui génère un décalage spectral par effet Stark DC. La mesure que nous réalisons ici porte sur l'émetteur étudié à la Fig. 5.3. Sans l'ajout d'un laser non-résonant qui permet de stabiliser l'environnement électrostatique, l'énergie de résonance de la transition  $|Y\rangle$  est décalée de  $86 \mu\text{eV}$  et sa largeur spectrale est 5 fois plus grande que celle donnée par la limite radiative. Une excitation non-résonante à très faible puissance permet de rétablir l'énergie de la transition à celle mesurée en photoluminescence non-résonante, et d'obtenir une largeur de raie minimale.

Pour étudier l'effet du laser non-résonant sur les propriétés quantiques de l'exciton lié, la mesure de la courbe de saturation est réalisée avec et sans laser non-résonant. L'énergie d'excitation sans laser résonant est inférieure, car comme vu précédemment l'énergie de résonance de  $|Y\rangle$  subit un décalage vers le rouge de  $86 \mu\text{eV}$ .

L'ajustement de l'Eq. 6.1 permet de déterminer la puissance de saturation  $P_{sat}$  avec et sans excitation non-résonante. Or on sait que  $P/P_{sat} = \Omega^2 T_1 T_2$ , et pour une excitation à onde continue on peut exprimer  $\Omega$  en fonction de P par

$$\hbar\Omega = \mu \sqrt{\frac{2P}{cn\epsilon_0 S}}, \quad (6.2)$$

avec  $c$  la vitesse de la lumière,  $n$  l'indice optique,  $\epsilon_0$  la permittivité diélectrique du vide et  $S$  l'aire du faisceau laser. On peut donc en conclure que

$$T_1 T_2 \mu^2 = \frac{\hbar^2 cn\epsilon_0 S}{2P_{sat}}. \quad (6.3)$$

A ce stade, on ne peut pas associer la stabilisation de l'environnement électrostatique à la variation d'un des paramètres de l'Eq. 6.3. Si on suppose que la fréquence de Rabi  $\Omega$  est constante, alors on observe une augmentation du produit  $T_1 T_2$ . Comme on l'a vu dans la section 5.6, l'augmentation des fluctuations de l'environnement de la molécule de  $\text{Te}_2$  entraîne une augmentation du temps de cohérence de phase  $T_2$ . Ainsi on peut supposer que  $T_1$  est constant, et que c'est  $T_2$  qui varie lorsque l'ajout du laser non-résonant décharge l'environnement de ses charges isolées. Dans la limite idéale où l'excitation non-résonante a permis d'atteindre la limite radiative  $T_2 = 2T_1$ , et en supposant que  $T_1 = 50 \text{ ps}$  [8], on peut alors donner une valeur approchée pour le moment dipolaire  $\mu$  de notre émetteur. Avec  $S = 1 \mu\text{m}$ , il vient  $\mu = 32 \text{ D}$ .

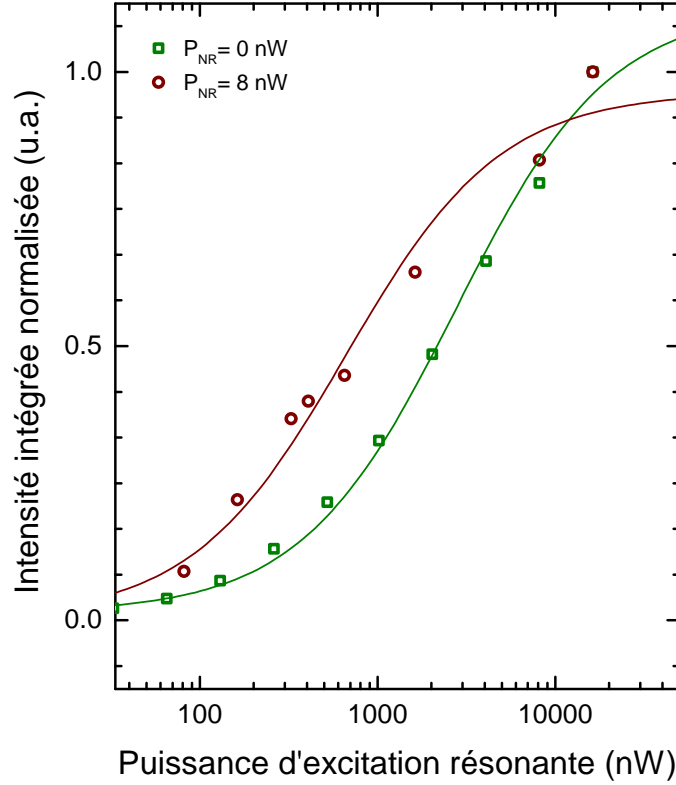


Figure 6.1 Intensité de la photoluminescence de  $|Y\rangle$  mesurée en utilisant  $|X\rangle$  comme état témoin. La puissance de saturation  $P_{sat}$  est modifiée par l'ajout d'un laser non-résonant à une puissance de 8 nW. Sans excitation non-résonante, l'ajustement d'une fonction de saturation (Eq. 6.1) donne  $P_{sat} = 2.74 \mu\text{W}$ . Avec l'ajout de l'excitation non-résonante elle diminue d'un ordre de grandeur pour atteindre  $P_{sat} = 0.78 \mu\text{W}$ .

Cette mesure ne donne qu'une valeur approchée, et la mesure du moment dipolaire devra être confirmée par l'observation des oscillations de Rabi. Cependant on démontre que l'ajout d'un laser non-résonant qui augmente la fluctuation des charges dans l'environnement de la molécule de  $\text{Te}_2$  augmente le produit  $T_1 T_2$ , et donc  $T_2$ .

### 6.1.2 Doublet de Autler-Townes

Le doublet de Autler-Townes est la manifestation du couplage fort entre un état quantique et un photon. La séparation en énergie du doublet donne le moment dipolaire de la transition excitée en résonance. Dans notre cas son observation est limitée d'une part par le pouvoir de résolution de notre système de détection, et d'autre part par notre capacité à rejeter

les photons issus de la diffusion du laser de ceux émis par photoluminescence résonante. Le pouvoir de séparation de notre système de détection nous permet d'obtenir une résolution de  $90 \mu\text{eV}$  par pixel. Ainsi pour observer un doublet « séparé » au sens de Rayleigh il faut que l'écart entre les deux niveaux soit d'au moins  $270 \mu\text{eV}$ . Si on se place dans l'approximation où  $\Delta = 0 \mu\text{eV}$ , et qu'on émet l'hypothèse que  $\mu \approx 20 D$ , alors cette séparation est atteinte pour une puissance d'excitation résonante de  $2 \text{ mW}$ . Pour des puissances d'excitation résonante de cet ordre de grandeur, la lumière diffusée qui atteint le détecteur est trop grande pour nous permettre d'effectuer des mesures satisfaisantes.

### Étude de la largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation résonante

Dans un premier temps on s'intéresse à l'augmentation de la largeur de raie en fonction de la puissance d'excitation résonante dans le cas où on n'ajoute pas de laser non-résonant. Le régime des excitations résonantes faibles  $0.04 \mu\text{W}$ - $80 \mu\text{W}$  est étudié dans la Fig. 6.2.

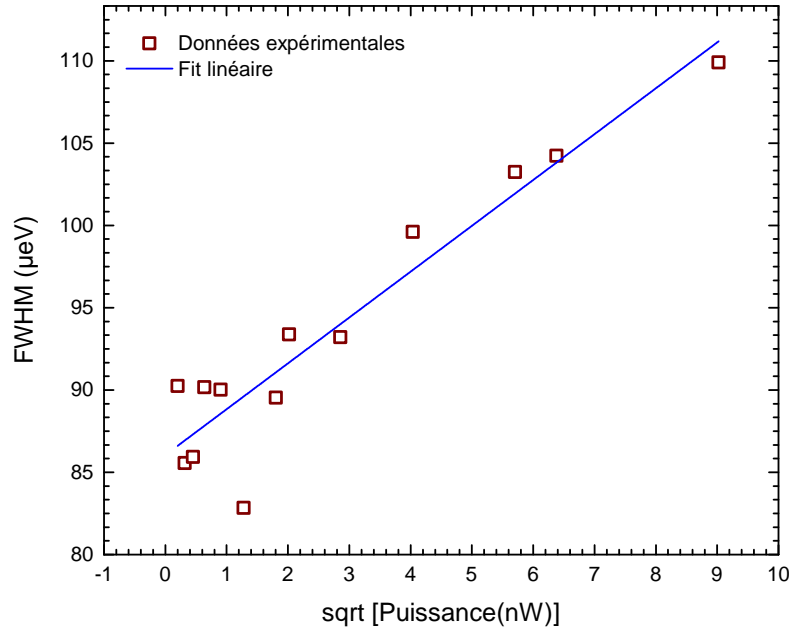


Figure 6.2 Largeur de raie de la photoluminescence issue de la transition  $|X\rangle$  lorsque la transition  $|Y\rangle$  est excitée en résonance en fonction de la puissance du laser résonant. On trace la largeur de raie en fonction de  $\sqrt{P}$ . Un ajustement linéaire nous permet de donner  $\mu = 9.6 D$ .

La largeur de raie peut s'exprimer comme  $FWHM = \Gamma + \hbar\Omega$ , où  $\Gamma$  prend en compte tous les élargissements indépendants de la puissance d'excitation. Selon l'Eq. 6.2, on peut alors exprimer la largeur de raie comme une fonction affine en  $\sqrt{P}$

$$FWHM = \Gamma + \mu \sqrt{\frac{2}{cn\epsilon_0 S}} \sqrt{P} \quad (6.4)$$

D'après la Fig. 6.2, le moment dipolaire de l'émetteur est de l'ordre de 9.6 D. Cette valeur est inférieure à ce à quoi on s'attend pour un centre isoélectronique [27], et à ce qui a été déterminé par l'étude de l'intensité de la photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation. D'après ce qu'on a vu dans les sections précédentes, ce résultat peut être analysé comme une augmentation du décalage spectrale  $\Delta$  avec la puissance d'excitation résonante. Les données présentées à la Fig. 6.2 ne permettent donc pas de déterminer le moment dipolaire car il apparait un phénomène de balayage, où  $\Delta$  augmente avec  $\Omega$ . La fréquence de Rabi doit être prise en compte sous sa forme généralisée  $\tilde{\Omega} = \sqrt{\Delta + \Omega}$ , et ne permet plus de conclure quant à la valeur de  $\mu$ . Pour compenser le taux de charge du laser résonant, on doit ajouter une excitation non-résonante.

### Doublet de Autler-Townes

Pour pouvoir observer le doublet de Autler-Townes, la transition  $|Y\rangle$  est excitée en résonance et la charge de l'environnement est compensée en ajustant la puissance du laser non-résonant. On considère que l'environnement électrostatique a été stabilisé lorsque le décalage spectrale par rapport à l'énergie mesurée en photoluminescence non-résonante est nul, et la largeur spectrale minimale. Compte tenu de la largeur de raie du laser résonant, cet ajustement doit se faire de manière très précise pour atteindre la condition d'excitation résonante. Le spectre de photoluminescence résonante est présenté en Fig. 6.3.

La puissance d'excitation résonante est fixée à  $40 \mu\text{W}$ . Il s'agit de la puissance maximale compte tenu du taux de réjection laser. On remarque que le spectre de la photoluminescence émise par la transition  $|X\rangle$  varie fortement avec la puissance du laser non-résonant. Pour une puissance d'excitation non-résonante de  $1.25 \mu\text{W}$ , on voit apparaître un pixel « éteint » entre deux pixels plus intenses. Associé à une augmentation de la largeur de la raie, on identifie ce phénomène au doublet de Autler-Townes.

Entre le spectre de photoluminescence à  $P_{NR} = 1.22 \mu\text{W}$  et celui à  $P_{NR} = 1.25 \mu\text{W}$ , on remarque que la différence de 13 comptes est grande devant le bruit ( $< 3$  comptes). En première approximation l'écart qui sépare les deux raies du doublet est de l'ordre de  $180 \mu\text{eV}$ , ce qui correspond à un moment dipolaire de 82 D, compte tenu de la puissance d'excitation de résonante de  $40 \mu\text{W}$ .

Cette mesure est encourageante, même si on est limité par la résolution de notre système de détection. On remarque que le contrôle de l'environnement électrostatique par l'excitation

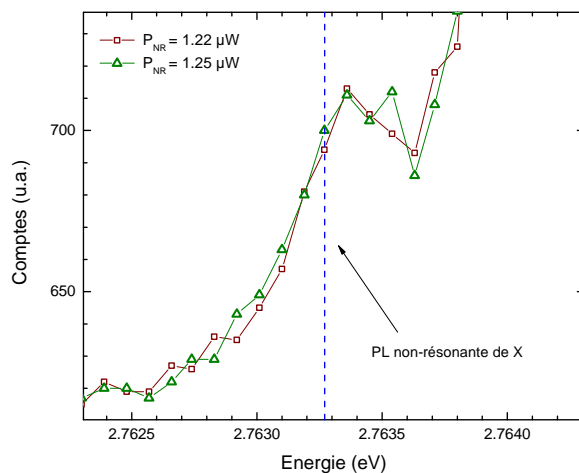


Figure 6.3 Spectre de photoluminescence résonante. On excite en résonance la transition  $|Y\rangle$  et on détecte la photoluminescence issue de la transition  $|X\rangle$ . L'apparition d'un doublet pour une excitation non-résonante de  $1.25 \mu\text{W}$  est le résultat du couplage entre un photon et l'état  $|Y\rangle$ . L'écart entre les 2 raies du doublet de Autler-Townes est d'environ  $180 \mu\text{eV}$ , ce qui correspond à un moment dipolaire de 82 D.

non-résonante est sensible. Pour une puissance d'excitation résonante donnée, ici choisie aussi élevée que possible, on doit ajuster l'excitation non-résonante pour compenser le phénomène de charge des défauts dans l'environnement. Dans la suite on cherche à démontrer l'excitation résonante de notre émetteur avec un laser pulsé.

## 6.2 Excitation pulsée d'un exciton lié

L'excitation pulsée d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  doit permettre d'observer des oscillations de Rabi. Ces oscillations correspondent à un contrôle de l'état quantique de l'exciton ( $|0\rangle$  ou  $|Y\rangle$ ) par une rotation d'angle  $\Omega t$  dans la sphère de Bloch induite par le laser résonant.

Le laser pulsé est un laser  $\text{Ti:Sa}$  doublé. La durée de l'impulsion initiale est de l'ordre de 100 fs, et le taux de répétition est de 80 MHz. Après passage dans le doubleur, et dans un « pulse shaper » qui permet de réduire la largeur spectrale de l'impulsion.

La réjection laser n'est pas efficace avec un laser pulsé, car comme vu précédemment celle-ci dépend sensiblement de la longueur d'onde et ne peut donc pas être optimisée pour toutes les fréquences composant l'impulsion. Il est donc difficile de discriminer la photoluminescence

issue de  $|X\rangle$ , car l'écart de structure fine est inférieur à la largeur de l'impulsion.

L'état actuel du montage expérimental ne permet pas d'atteindre une puissance d'excitation suffisante pour observer des oscillations de Rabi. Dans cette section on propose une technique expérimentale permettant de mesurer la photoluminescence résonante dans des conditions d'excitation avec un laser pulsé, puis on présente une première mesure des oscillations de Rabi où  $\Theta < \pi$ . Cette technique est avantageuse comparée à la méthode plus classique qui consiste à mesurer l'intensité de la réplique phonon 1LO car le signal ainsi mesuré est plus intense, et mieux modélisé par un Lorentzienne.

### 6.2.1 Mesure de la photoluminescence résonante par effet tunnel

L'excitation résonante d'une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  permet de lier un exciton à une molécule de  $\text{Te}_2$  voisine. Les détails du processus de capture de l'exciton ne seront pas présentés en détail. On suppose que le processus est similaire à ce qui est observé pour les centres isoélectroniques d'azote dans le  $\text{GaP}$  [33, 39], où l'exciton peut éventuellement s'échapper pour se lier à une deuxième molécule.

La Fig. 6.4 présente le spectre de photoluminescence non-résonante de deux excitons liés à des molécules de  $\text{Te}_2$  proches spatialement. On estime que la distance est inférieure à environ  $0.5 \mu\text{m}$ , car les deux  $\text{Te}_2$  sont dans la zone de détection de notre microscope confocal. Le montage a été aligné pour maximiser la photoluminescence issue de l'exciton N°1, car pour qu'il soit possible de faire de l'excitation résonante le faisceau doit être strictement centré sur la molécule de  $\text{Te}_2$ .

On utilise le laser à onde continue pour caractériser le transfert entre l'exciton N°1 excité en résonance, et l'exciton N°2 dont on détecte la photoluminescence. La lame d'onde motorisée placée entre les deux polariseurs du montage expérimental présenté en Fig. 4.1 permet de mesurer la photoluminescence « directe », c'est-à-dire de même polarisation que le laser, ou « croisée », c'est-à-dire de polarisation orthogonale à celle du laser. On mesure la photoluminescence issue de la transition  $|X\rangle$  et de la transition  $|Y\rangle$  de l'exciton N°2 en fonction de l'énergie et de la polarisation du laser résonant. Il y a ainsi 8 cas à étudier, qu'on regroupe sur 4 graphiques en Fig. 6.5 :

- Excitation résonante de  $|X_1\rangle$  en polarisation  $\pi_X$  en détection directe/croisée
- Excitation résonante de  $|X_1\rangle$  en polarisation  $\pi_Y$  en détection directe/croisée
- Excitation résonante de  $|Y_1\rangle$  en polarisation  $\pi_Y$  en détection directe/croisée
- Excitation résonante de  $|Y_1\rangle$  en polarisation  $\pi_X$  en détection directe/croisée

La Fig. 6.5 contient toute l'information nécessaire à la compréhension du transfert par effet

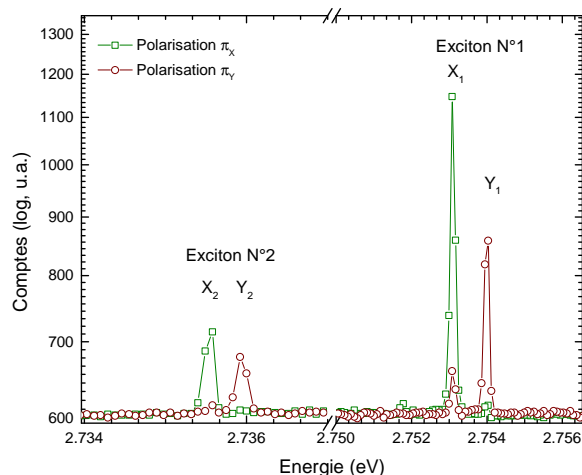


Figure 6.4 Photoluminescence non-résonante de deux excitons liés à des molécules de  $\text{Te}_2$  proche l'une de l'autre (la distance est inférieure au diamètre de la zone de détection, soit environ  $0.5\ \mu\text{m}$ ). Dans le suite on excite en résonance la transition  $|Y\rangle$  de l'exciton N°1 et on détecte la photoluminescence issue de l'exciton N°2.

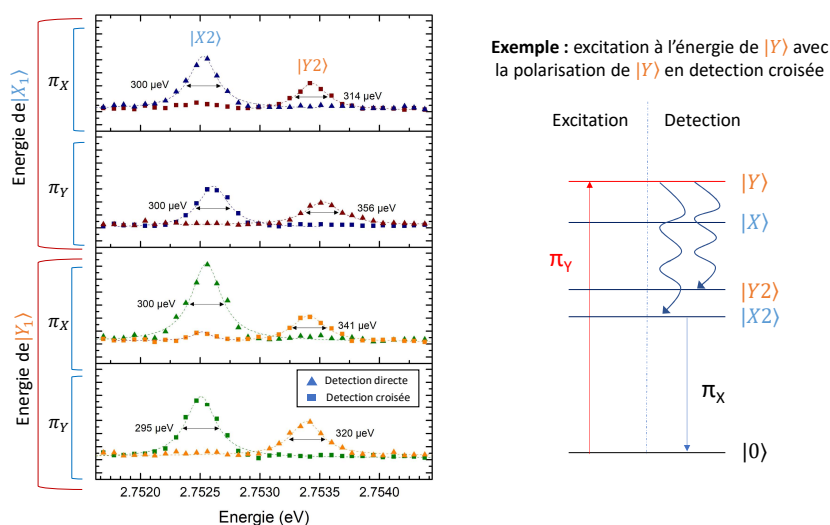


Figure 6.5 Etude de la photoluminescence de l'exciton N°2 par effet tunnel. L'excitation est résonante avec les transitions  $|X\rangle$  et  $|Y\rangle$  de l'exciton N°1. L'encadré à droite donne un exemple de stratégie de détection. Pour cet exemple la transition  $|Y_1\rangle$  est excité en résonance avec un laser CW polarisé  $\pi_Y$ . On détecte la photoluminescence « croisée », c'est-à-dire  $\pi_X$ .



tunnel. Dans un premier temps, on remarque que la photoluminescence émise par l'exciton N°2 est non-nulle en détection « croisée ». On attribue cette photoluminescence d'une part à un transfert non-radiatif  $|Y_1\rangle \rightarrow |X_1\rangle$  puis un effet tunnel  $|X_1\rangle \rightarrow |X_2\rangle$ , et d'autre part à un effet tunnel  $|Y_1\rangle \rightarrow |Y_2\rangle$ , puis un transfert non-radiatif  $|Y_2\rangle \rightarrow |X_2\rangle$ . Ici la notation  $\rightarrow$  prend en compte des processus indirects, possiblement à plusieurs étapes. Sans conclure quant au transfert dominant, on peut affirmer que l'intensité de la photoluminescence mesurée en  $|X_2\rangle$  est proportionnelle à la photoluminescence de la transition  $|Y_1\rangle$  excité en résonance.

De plus, on remarque que l'absorption est non nulle lorsqu'on excite en résonance la transition  $|Y\rangle$  avec une lumière polarisé  $\pi_X$  (et réciproquement pour  $|X\rangle$ ). Il s'agit là d'un phénomène exotique qu'on associe à un mélange trous-lourds/trous-légers [40, 41] qui modifie les règles de sélection dans le cas d'une excitation résonante. Dans la suite on ne cherche pas à expliquer cette observation, et on se place dans le cas où on excite en résonance  $|Y_1\rangle$  avec une polarisation  $\pi_Y$ . Pour limiter les photons parasites issus de la réflexion sur les optiques on se place en détection « croisée ».

Ainsi on a accès à l'intensité de la photoluminescence de  $|Y_1\rangle$  grâce à un état témoin qui est dans ce cas à  $-29.9$  meV de l'énergie de notre émetteur. Cela nous permet d'utiliser un filtre interférentiel accordable pour éliminer le laser avant son passage dans le système de détection.

### 6.2.2 Oscillations de Rabi amorties d'un exciton lié

Dans ce qui suit on suppose que  $\Delta = 0$ ,  $T_2 = 2T_1$  et que lorsque le laser résonant est éteint il n'y a aucun exciton lié à la molécule de  $\text{Te}_2$  étudiée. La résolution des équations de Bloch optiques par la méthode de Torrey donne l'intensité de la photoluminescence résonante en fonction du temps  $\tau$  et de la fréquence de Rabi amortie  $\Omega_\Gamma = \sqrt{\Omega^2 - (\Gamma/4)^2}$

$$I(\Omega, \tau) = \frac{1}{2} \frac{\Omega^2}{\Omega^2 + \Gamma^2/2} \left[ 1 - e^{-(3\Gamma/4)\tau} \left( \cos \Omega_\Gamma \tau + \frac{3\Gamma}{4\Omega_\Gamma} \sin \Omega_\Gamma \tau \right) \right]. \quad (6.5)$$

Si  $\Gamma = 0$ , alors on observe des oscillations de Rabi avec un visibilité maximale. Si  $\Gamma \neq 0$ , la photoluminescence tend vers  $\frac{\Omega^2}{\Omega^2 + \Gamma^2/2}$  en régime continu. La décroissance de la visibilité des oscillations est exponentielle. Comme vu précédemment sur la Fig. 3.3, la visibilité des oscillations dépend du rapport  $\Omega/\Gamma$ .

On présente ici un résultat partiel, qui permet de déterminer les conditions dans lesquelles l'observation d'oscillations de Rabi sera éventuellement possible. La Fig. 6.6 présente une mesure de la photoluminescence résonante de  $|Y\rangle$  en fonction de la racine carrée de la puissance

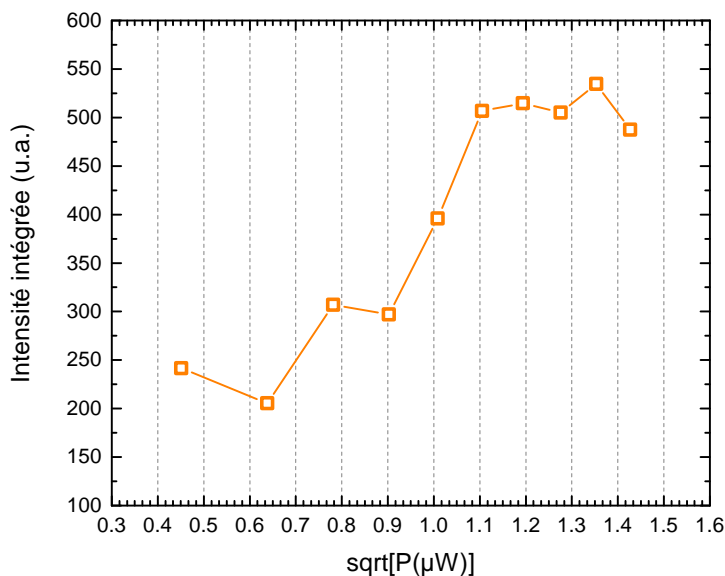


Figure 6.6 Oscillations de Rabi amorties d'un exciton lié à une paire de  $\text{Te}_2$  dans le ZnSe.

d'excitation résonante. Pour des puissances d'excitation inférieures à  $0.5 \mu\text{W}$  la photoluminescence est nulle. Le signal est dominé par le bruit de charge de la caméra CCD. L'intensité de la photoluminescence varie de  $0.5 \mu\text{W}$  à  $1.2 \mu\text{W}$  pour atteindre ce qui semble être un maximum.

Nous sommes ici limités par la puissance de notre laser pulsé. D'après l'Eq. 3.26, en considérant que la durée de l'impulsion laser est de  $\tau=100 \text{ ps}$ , on atteindrait  $\Theta = \pi$  pour une excitation résonante de  $70 \mu\text{eV}$ . Pour atteindre cette puissance d'excitation résonante, il faut modifier les éléments optiques utilisés dans le module doubleur de fréquence du laser pulsé pour les optimiser à la longueur d'onde de travail ( $450 \text{ nm}$ ).

Ainsi nous avons démontré qu'il est possible d'utiliser l'effet tunnel entre deux émetteurs uniques pour mesurer des oscillations de Rabi. Cette technique est avantageuse comparée à la méthode classique qui consiste à mesurer l'intensité d'une réplique phonon car la raie mesurée ici est fine et intense. De plus le signal est bien modélisé par une Lorentzienne, ce qui n'est pas le cas de la réplique phonon 1LO.

## CHAPITRE 7 CONCLUSION

Pour conclure, l'excitation résonante d'un exciton lié à une molécule de  $\text{Te}_2$  dans le  $\text{ZnSe}$  est limitée par l'accumulation de charges isolées dans le voisinage de l'émetteur. Les fluctuations de l'environnement électrostatique sont modélisées par une marche aléatoire qui charge ou décharge les défauts atomiques du matériau hôte, créant ainsi un décalage spectral variable au travers de l'interaction Stark DC. L'ajout d'une excitation non-résonante permet de décharger l'environnement en apportant des charges libres photo-crées qui permettent la désexcitation radiative des charges isolées.

### 7.1 Synthèse des travaux

L'excitation non-résonante d'une molécule diatomique de  $\text{Te}$  dans le  $\text{ZnSe}$  permet de localiser et d'identifier la quasi-particule liée. Dans ce travail de recherche nous avons plus particulièrement étudié le cas de l'exciton lié.

L'excitation résonante est nécessaire au contrôle cohérent de ce système à 2 niveaux. Des mesures préliminaires ont montrées qu'il est impossible d'exciter de manière résonante un exciton lié car l'accumulation de charges dans l'environnement de l'émetteur entraîne un élargissement spectral et un décalage vers le rouge de l'énergie d'émission.

Nous avons montré que l'ajout d'un laser non-résonant permet d'apporter des paires électrons-trous libres qui rendent possible la recombinaison radiative des charges isolées.

L'augmentation du taux de fluctuations de l'environnement électrostatique se traduit dans une mesure de photoluminescence-excitation par une diminution de la largeur spectrale de l'absorption. Ce phénomène est fidèlement modélisé par la théorie du motional narrowing.

En excitation résonante, on observe une augmentation du produit  $T_1 T_2$ . L'observation du doublet de Autler-Townes permet de démontrer le couplage entre la transition  $|Y\rangle$  de l'exciton et le photon incident. On peut en déduire une première approximation du moment dipolaire de l'ordre de 80 D.

Nos mesures ont été limitées par la puissance moyenne du laser pulsé. Dans les conditions de la mesure, où  $\Omega \approx \Gamma$ , on a pu observer des oscillations de Rabi amorties, qui ne permettent pas de conclure quant au moment dipolaire de la transition étudiée.

Pour aller plus loin, il est nécessaire d'augmenter d'un ordre de grandeur la puissance d'excitation résonante. Nous suggérons d'adapter les optiques du doubleur de laser pulsé pour

maximiser la puissance à 450 nm.

## 7.2 Signification des résultats

Les résultats de ce travail de recherche permettent de déterminer le régime idéal pour mettre en œuvre des mesures d'excitation résonante d'un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe. Nous avons montré que l'augmentation du taux de fluctuations de l'environnement électrostatique permet de se prémunir de l'effet délétère du bruit de charge.

Les régime de motional narrowing dans le cas d'un environnement chargé n'est atteint qu'à haute puissance, ce qui rend difficile la réjection laser. Ainsi il est préférable de travailler avec un environnement complètement déchargé, c'est-à-dire en ajoutant un laser non-résonant. La puissance du laser non-résonant est choisie de telle sorte a décharger l'environnement, tout en limitant la photoluminescence induite par l'excitation non-résonante. Dans ce régime l'énergie de la transition ne varie pas. Elle est mesurable par excitation non-résonante. Nous avons montré que ce régime correspond à une largeur spectrale minimale, proche de la limite radiative, et donc à un temps de cohérence maximal.

## 7.3 Contributions au développement des centre isoélectroniques

Il a déjà été démontré qu'il est possible d'initialiser le spin d'un trou lie a un centre isoélectronique de Te dans le ZnSe. Dans ce travail de recherche, on a de plus démontré que l'excitation résonante d'un exciton lié est possible sous certaines conditions mentionnées précédemment. Nous avons mesuré le moment dipolaire de la transition, qu'on estime à environ 80 D. Pour démontrer le potentiel des centre isoélectroniques de Te dans le ZnSe comme qubits adressables optiquement il reste encore à démontrer le contrôle cohérent du système.

## 7.4 Améliorations futures

L'amélioration de l'émetteur quantique étudié ici passera nécessairement par un travail sur la croissance des échantillons. Nous avons volontairement évité de considérer la localisation des charges, mais il est raisonnable de penser qu'elles sont en partie localisées à l'interface entre le matériau hôte et le substrat. Ainsi nous pourrions travailler sur des échantillons avec une plus grande épaisseur de ZnSe entre la région active dopée au Te et le GaAs. Pour limiter l'afflux de charge provenant du substrat on peut aussi envisager d'ajouter une barrière entre le ZnSe et le GaAs pour limiter le transfert de charge par effet tunnel.

Pour permettre une meilleure réjection de la lumière issue du laser, ainsi qu'une augmentation

de l'intensité de la photoluminescence émise par notre émetteur il serait judicieux d'utiliser une micro-cavité semi-conductrice.

## RÉFÉRENCES

- [1] S. Marcet, R. André et S. Francoeur, “Excitons bound to te isoelectronic dyads in ZnSe,” *Physical Review B*, vol. 82, n°. 23, 2010.
- [2] J. S. Bell, “On the Einstein Podolsky Rosen paradox,” *Physics Physique Fizika*, vol. 1, n°. 3, p. 195, 1964.
- [3] A. Aspect, J. Dalibard et G. Roger, “Experimental test of Bell’s inequalities using time-varying analyzers,” *Physical Review Letters*, vol. 49, n°. 25, p. 1804, 1982.
- [4] J. Preskill, “Quantum computing in the NISQ era and beyond,” *Quantum*, vol. 2, p. 79, 2018.
- [5] J. M. Chow *et al.*, “Universal quantum gate set approaching fault-tolerant thresholds with superconducting qubits,” *Physical review letters*, vol. 109, n°. 6, p. 060501, 2012.
- [6] F. Arute *et al.*, “Quantum supremacy using a programmable superconducting processor,” *Nature*, vol. 574, n°. 7779, p. 505–510, 2019.
- [7] C. Antón *et al.*, “Interfacing scalable photonic platforms : Solid-state based multi-photon interference in a reconfigurable glass chip,” *Optica*, vol. 6, n°. 12, p. 1471–1477, 2019.
- [8] P. St-Jean, G. Ethier-Majcher, R. Andre et S. Francoeur, “High-fidelity and ultrafast initialization of a hole spin bound to a Te isoelectronic center in ZnSe,” *Physical Review Letters*, vol. 117, n°. 16, p. 167401, 2016. [En ligne]. Disponible : <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/27792390>
- [9] H. S. Nguyen *et al.*, “Photoneutralization and slow capture of carriers in quantum dots probed by resonant excitation spectroscopy,” *Physical Review B*, vol. 87, n°. 11, 2013.
- [10] J. Chiaverini *et al.*, “Realization of quantum error correction,” *Nature*, vol. 432, n°. 7017, p. 602–605, 2004.
- [11] L. DiCarlo *et al.*, “Demonstration of two-qubit algorithms with a superconducting quantum processor,” *Nature*, vol. 460, n°. 7252, p. 240–244, 2009.
- [12] D. P. DiVincenzo, “The physical implementation of quantum computation,” *Fortschritte der Physik : Progress of Physics*, vol. 48, n°. 9-11, p. 771–783, 2000.
- [13] D. Najer *et al.*, “A gated quantum dot strongly coupled to an optical microcavity,” *Nature*, p. 1–1, 2019.
- [14] P. Senellart, G. Solomon et A. White, “High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources,” *Nature Nanotechnology*, vol. 12, n°. 11, p. 1026–1039, nov. 2017. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1038/nnano.2017.218>

- [15] A. Dousse *et al.*, “Ultrabright source of entangled photon pairs,” *Nature*, vol. 466, n° 7303, p. 217–20, 2010. [En ligne]. Disponible : <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/20613838>
- [16] N. Somaschi *et al.*, “Near-optimal single-photon sources in the solid state,” *Nature Photonics*, vol. 10, n° 5, p. 340–345, 2016.
- [17] R. Melet *et al.*, “Resonant excitonic emission of a single quantum dot in the Rabi regime,” *Physical Review B*, vol. 78, n° 7, p. 073301, 2008.
- [18] H. Ollivier *et al.*, “Reproducibility of high-performance quantum dot single-photon sources,” *ACS Photonics*, vol. 7, n° 4, p. 1050–1059, 2020.
- [19] M. Doherty *et al.*, “Theory of the ground-state spin of the nv- center in diamond,” *Physical Review B*, vol. 85, n° 20, p. 205203, 2012.
- [20] C. A. Ryan, J. S. Hodges et D. G. Cory, “Robust decoupling techniques to extend quantum coherence in diamond,” *Physical Review Letters*, vol. 105, n° 20, p. 200402, 2010.
- [21] N. Bar-Gill *et al.*, “Solid-state electronic spin coherence time approaching one second,” *Nature communications*, vol. 4, n° 1, p. 1–6, 2013.
- [22] P. L. Stanwix *et al.*, “Coherence of nitrogen-vacancy electronic spin ensembles in diamond,” *Physical Review B*, vol. 82, n° 20, p. 201201, 2010.
- [23] L. Childress et R. Hanson, “Diamond nv centers for quantum computing and quantum networks,” *MRS bulletin*, vol. 38, n° 2, p. 134–138, 2013.
- [24] C. P. Anderson *et al.*, “Electrical and optical control of single spins integrated in scalable semiconductor devices,” *Science*, vol. 366, n° 6470, p. 1225–1230, 2019.
- [25] D. G. Thomas et J. J. Hopfield, “Isoelectronic traps due to nitrogen in gallium phosphide,” *Physical Review*, vol. 150, n° 2, p. 680–689, 1966.
- [26] G. Éthier-Majcher, P. St-Jean et S. Francoeur, “Light- and heavy-hole trions bound to isoelectronic centers,” *Phys. Rev. B*, vol. 92, p. 155436, Oct 2015. [En ligne]. Disponible : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.92.155436>
- [27] G. Ethier-Majcher *et al.*, “Complete quantum control of exciton qubits bound to isoelectronic centres,” *Nat Commun*, vol. 5, p. 3980, 2014. [En ligne]. Disponible : <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/24875932>
- [28] S. Marcet *et al.*, “Charged excitons and biexcitons bound to isoelectronic centers,” *Physical Review B*, vol. 82, n° 23, 2010.

- [29] S. Francoeur et S. Marcet, “Effects of symmetry-breaking perturbations on excitonic states bound to systems of reduced symmetry,” *Journal of Applied Physics*, vol. 108, n° 4, 2010.
- [30] J. Houel *et al.*, “Probing single-charge fluctuations at a GaAs/AlAs interface using laser spectroscopy on a nearby InGaAs quantum dot,” *Physical Review Letters*, vol. 108, n° 10, p. 107401, 2012. [En ligne]. Disponible : <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/22463453>
- [31] M. Hauck *et al.*, “Locating environmental charge impurities with confluent laser spectroscopy of multiple quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 90, n° 23, 2014.
- [32] R. Bhargava, *Properties of wide bandgap II-VI semiconductors*. London, U.K. : INSPEC, Institute of Electrical Engineers, 1997.
- [33] G. Éthier-Majcher *et al.*, “Photoluminescence from single nitrogen isoelectronic centers in gallium phosphide produced by ion implantation,” *Journal of Applied Physics*, vol. 114, n° 3, p. 034307, 2013.
- [34] J. J. Hopfield, D. G. Thomas et R. T. Lynch, “Isoelectronic donors and acceptors,” *Physical Review Letters*, vol. 17, n° 6, p. 312–315, 1966.
- [35] B. Mollow, “Power spectrum of light scattered by two-level systems,” *Physical Review*, vol. 188, n° 5, 1969.
- [36] S. H. Autler et C. H. Townes, “Stark effect in rapidly varying fields,” *Physical Review*, vol. 100, n° 2, p. 703, 1955.
- [37] R. Kubo, “A stochastic theory of line-shape and relaxation,” *Fluctuation, Relaxation and Resonance in Magnetic Systems*, vol. 23, 1962.
- [38] A. Berthelot *et al.*, “Voltage-controlled motional narrowing in a semiconductor quantum dot,” *New Journal of Physics*, vol. 11, n° 9, p. 093032, 2009.
- [39] J. A. Kash, “Exciton tunneling inhibited by disorder in  $\text{GaAs}_{1-x}\text{P}_x$ :N,” *Phys. Rev. B*, vol. 29, p. 7069–7072, Jun 1984.
- [40] C. Tonin *et al.*, “Polarization properties of excitonic qubits in single self-assembled quantum dots,” *Physical Review B*, vol. 85, n° 15, p. 155303, 2012.
- [41] G. Ethier-Majcher, P. St-Jean et S. Francoeur, “Energy reversal of light- and heavy-hole excitons bound to isoelectronic centers,” *Physical Review B*, vol. 98, n° 11, 2018.