

MICROCAVITÉS ET CRISTAUX PHOTONIQUES *MICROCAVITIES AND PHOTONIC CRYSTALS*

Les boîtes quantiques semi-conductrices : des atomes artificiels pour l'optique quantique

Jean-Michel Gérard^a, E. Moreau^b, I. Robert^b, I. Abram^b, B. Gayral^b

^a CEA-Grenoble/DRFMC/SP2M/ Equipe mixte « Nanophysique et semi-conducteurs », 17, rue des Martyrs, 38054 Grenoble cedex 9, France

^b CNRS/Laboratoire de photonique et de nanostructures, 196, av. Henri Ravera, 92225 Bagneux cedex, France

Reçu et accepté 23 novembre 2001

Note présentée par Guy Laval.

Résumé

Le développement récent de boîtes quantiques semi-conductrices de bonne qualité a permis de réaliser en phase solide des expériences d'optique quantique sur ces « atomes artificiels ». Nous discutons plus particulièrement le contrôle de leur émission spontanée en microcavité (couplage fort, exaltation de l'émission spontanée, émission monomode) et la génération d'états quantiques de la lumière (impulsions à un et deux photons). Nous présentons enfin une source solide monomode de photons uniques, premier composant optoélectronique dont le fonctionnement repose sur un effet d'électrodynamique quantique en cavité, et constitué par une boîte quantique unique placée au cœur d'un micropilier. Pour citer cet article : J.-M. Gérard et al., C. R. Physique 3 (2002) 29–40. © 2002 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

boîte quantique / microcavité optique / optique quantique / effet Purcell / source à un photon

Semiconductor quantum dots: artificial atoms for quantum optics

Abstract

The recent development of high quality semiconductor quantum dots has opened the way to quantum optics experiments in the solid-state on these 'artificial atoms'. We discuss in particular the control of their spontaneous emission in microcavities (strong coupling, spontaneous emission enhancement, monomode emission) and the generation of quantum states of light (single photons and photon pairs). We finally present a single-mode solid-state single photon source, which is based on a single quantum dot in a pillar microcavity, and is the first of a novel class of optoelectronic devices relying on cavity quantum electrodynamics for their operation. To cite this article: J.-M. Gérard et al., C. R. Physique 3 (2002) 29–40. © 2002 Académie des sciences/Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

quantum dot / optical microcavity / quantum optics / Purcell effect / single-photon source

Adresse e-mail : gerard@drfmc.ceng.cea.fr (J.-M. Gérard).

1. Introduction

L'étude d'atomes placés dans des cavités micro-ondes ou optiques, s'est fortement développée depuis le début des années 80, pour devenir un domaine de recherche à part entière aux confins de la physique atomique et de l'optique quantique, l'électrodynamique quantique en cavité (EDQC) [1]. L'EDQC constitue depuis 1990 une source d'inspiration essentielle pour la recherche fondamentale en optoélectronique [2]. Les expériences sur les atomes ont en effet montré qu'il est possible de modifier en profondeur les processus optiques élémentaires (dont l'émission spontanée (ES)) en plaçant cet atome en microcavité pour modifier l'interaction entre celui-ci et le champ électromagnétique. Parmi les effets d'EDQC les plus spectaculaires, on peut citer par exemple la réversibilité du phénomène d'émission spontanée dans le régime dit « de couplage fort » ou encore la modification du diagramme de rayonnement, l'exaltation et l'inhibition du taux d'ES en régime « de couplage faible ». Ces effets de cavité permettent d'améliorer les performances des composants optoélectroniques existants (diodes électroluminescentes et lasers, détecteurs. . .) mais aussi de créer des dispositifs présentant une fonctionnalité originale, tels que les sources solides monomodes de photons uniques.

La qualité des microcavités optiques monolithiques disponibles dès le début des années 90 a permis d'obtenir des premiers résultats très encourageants, tels que l'observation du régime de couplage fort pour des puits quantiques dans des microcavités planaires [3], la réalisation de diodes électroluminescentes de haute efficacité exploitant la redistribution angulaire de l'ES [4], ou encore de microlasers à très faible seuil [5,6]. Cependant, l'observation de certains effets EDQC importants dont l'exaltation de l'ES (effet Purcell) a été retardée par le fait que les émetteurs les plus usuels en phase solide présentent une largeur spectrale importante pour des raisons diverses (distribution thermique des électrons dans les semi-conducteurs massifs ou les puits quantiques, couplage aux modes de vibration du réseau pour les atomes de terres rares. . .).

Dans ce contexte, la disponibilité de boîtes quantiques (BQs) semi-conductrices de bonne qualité, « atomes artificiels » présentant des raies d'émission fines a joué un rôle essentiel. Les BQs ont permis par exemple d'observer pour la première fois l'effet Purcell à l'état solide [7–12], et de réaliser la première source solide monomode de photons uniques [11]. Dans cet article de revue, nous présentons tout d'abord quelques propriétés des BQs, ainsi que les principaux types de microcavités semi-conductrices disponibles. Après avoir discuté les perspectives de réalisation d'un régime de couplage fort pour une BQ unique en microcavité, nous présenterons les principaux résultats obtenus à ce jour en régime de couplage faible. Nous relaterons ensuite le développement récent d'une source solide monomode de photons uniques, basée sur une boîte quantique unique en microcavité. Ce composant révolutionnaire, qui exploite à la fois l'interaction coulombienne entre porteurs piégés dans la BQ et l'effet Purcell, est le premier d'une nouvelle classe de composants optoélectroniques exploitant les effets d'EDQC.

2. Les BQs semi-conductrices : des atomes artificiels pour l'optique quantique

Les expériences d'optique quantique ou d'EDQC sur des BQs ont été pour l'heure principalement réalisées sur des BQs d'InAs obtenues par croissance contrainte auto-organisée, placées au sein de microcavités GaAs/AlAs. Nous présentons ce système, le plus mûr technologiquement, sans oublier que d'autres familles de BQs semi-conductrices présentent un fort intérêt dans ce contexte, par exemple les BQs II–VI obtenues elles-aussi par croissance épitaxiale [13,14], les BQs formées par les fluctuations d'épaisseur des puits quantiques [15] ou encore les nanocristaux semi-conducteurs [16,17].

On sait réaliser depuis 1985 [18] des inclusions semi-conductrices d'InAs dans GaAs de taille nanométrique en exploitant le mode de croissance tridimensionnel (3D) d'InAs sur GaAs en épitaxie par jets moléculaires. Ces inclusions semi-conductrices, entourées par un matériau de plus grande bande interdite, constituent des BQs pour les électrons et les trous. Leurs premiers états électroniques de conduction et de valence, discrétisés par le confinement 3D, sont bien séparés en énergie (~ 50 meV en bande de conduction, ~ 10 à 20 meV en bande de valence). On peut donc en ce sens parler des BQs comme

« d'atomes artificiels ». L'existence par ailleurs d'un continuum d'états électroniques correspondant aux bandes de valence et de conduction de la barrière de GaAs autorise, comme pour les puits quantiques, un pompage optique ou électrique non-résonant des BQs. Ce point est non seulement commode pour leur étude mais aussi essentiel pour le développement futur de composants optoélectroniques pompés électriquement.

Un réseau de BQs d'InAs présente une raie d'émission assez large spectralement (30 à 100 meV), dont la position en énergie peut être ajustée en jouant sur la taille moyenne des BQs par le biais des conditions de croissance [19]. Cette largeur spectrale importante reflète les variations de l'énergie de confinement des porteurs dues aux fluctuations de taille de BQ à BQ. La qualité structurale de ces nanostructures est confirmée par l'étude de leur rendement radiatif; celui-ci reste très proche de l'unité tant que la thermoémission des porteurs de charge hors des BQs reste négligeable ($T < 100$ à 200 K, cette température critique dépendant de la taille des BQs). Cet excellent rendement résulte de la localisation des porteurs dans les BQs, qui évite leur diffusion vers des centres recombinants non-radiatifs éventuels [20].

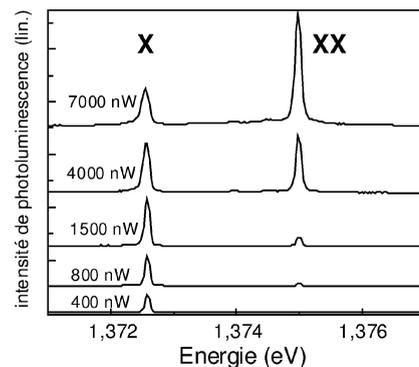
La transition optique interbande des BQs d'InAs possède un fort moment électrique dipolaire orienté dans le plan xy de la couche épitaxiale. La force d'oscillateur par BQ, estimée par spectroscopie d'absorption, est de l'ordre de 10 [21]. Les composantes d_x et d_y du moment dipolaire sont de l'ordre de $9 \cdot 10^{-19}$ C·m, et donc typiquement dix fois plus grandes que pour un atome émettant dans la même gamme spectrale. En conséquence les BQs d'InAs dans une matrice de GaAs présentent un temps de vie radiatif relativement court ($\sim 1,3$ ns).

L'étude de BQs isolées, par exemple par microphotoluminescence, a joué un rôle essentiel dans la compréhension des propriétés d'émission de ces atomes artificiels. En conséquence du caractère discret de la densité d'états électroniques, une BQ unique présente une raie d'émission spectralement étroite ($\ll kT$) en régime de faible excitation. Des expériences de mélange à quatre ondes ont très récemment révélé que cette largeur spectrale (~ 1 μ eV) est seulement limitée, comme pour un atome, par la durée de vie radiative de la paire électron-trou piégée [22] à une température de l'ordre du Kelvin. Cependant, et contrairement à un atome réel, une BQ ne peut pas en général être considérée comme un système quantique isolé. Une mesure directe de la largeur spectrale de sa raie d'émission par microphotoluminescence donne par exemple des valeurs plus importantes, d'une dizaine à une centaine de μ eV [23], car cette raie d'émission subit une diffusion spectrale en réponse aux fluctuations de l'environnement électrostatique de la BQ en cours d'expérience. Le couplage électron-phonon a des effets encore plus spectaculaires; il entraîne un fort élargissement homogène de la raie d'émission [22,24], dont la largeur spectrale devient de l'ordre de l'ordre de 10 meV à 300 K [25]. En dépit de cet effet, la largeur de raie d'une BQ unique reste nettement plus faible que celles des autres émetteurs disponibles à l'état solide, ce qui permet d'exploiter efficacement des microcavités de grand Q ($Q \gg 1000$) pour modifier et contrôler l'émission spontanée de BQs comme nous le verrons dans la Section 4.

En raison du fort confinement 3D des électrons et des trous, l'interaction coulombienne entre porteurs de charge piégés joue un rôle important dès que le nombre de ces particules peut fluctuer, et en particulier

Figure 1. Spectres de photoluminescence obtenus pour une BQ d'InAs pour différentes puissances d'excitation.

Figure 1. Photoluminescence spectra of a single InAs QD for different excitation powers.



dès que plusieurs paires électron–trou peuvent être capturées par la BQ [26]. Ce point est illustré par la Fig. 1, qui présente l'évolution du spectre de photoluminescence en fonction de la puissance d'excitation. Les raies X (raie « exciton », de dépendance linéaire) et XX (raie « biexciton », de dépendance quadratique) sont attribuées respectivement à l'émission de la BQ lorsqu'elle contient une seule ou deux paires électron–trou. La séparation spectrale de ces raies, ici 2 meV, varie quelque peu de BQ à BQ . . . et de laboratoire à laboratoire. Ceci illustre la sensibilité de ces effets coulombiens à la taille et à la forme précise des BQs. Nous verrons dans la Section 5 qu'ils jouent un rôle essentiel dans la préparation de photons uniques et de paires de photons.

3. Présentation succincte des micro-cavités semi-conductrices tridimensionnelles

Contrairement au domaine spectral des micro-ondes, pour lequel on dispose de miroirs supraconducteurs, il n'existe pas de miroir métallique sans pertes aux fréquences optiques. Il est cependant possible de confiner la lumière dans une ou plusieurs dimensions de l'espace, et de réaliser des cavités de haut facteur de surtension Q , en utilisant uniquement des matériaux diélectriques. Deux effets principaux sont ici mis en œuvre. Le premier est l'effet de réflexion totale interne, exploité depuis longtemps dans les fibres optiques, et sur lequel repose également le confinement 3D des photons dans les microsphères [6,27] et dans les microdisques [8,28] (Fig. 2b). Le second est un effet d'interférence, la réflexion de Bragg distribuée, qui est communément employé pour réaliser des miroirs diélectriques et a été étendu à un cadre multi-dimensionnel avec le développement récent des cristaux photoniques [29]. Les micropiliers [30,31] (Fig. 2a) associent un effet de guidage de la lumière le long de l'axe du pilier et la réflexion par les miroirs de Bragg pour assurer un confinement 3D. Une autre approche, illustrée Fig. 2c, consiste à réaliser une cavité entourée d'un cristal photonique bidimensionnel (qui assure un confinement latéral des photons) à partir d'une membrane semi-conductrice (qui guide la lumière dans son plan) [32,33].

Ces exemples illustrent la diversité des approches possibles pour assurer un confinement 3D de la lumière à l'échelle de la longueur d'onde dans une structure diélectrique. Il est important de noter ici que les microcavités obtenues ne constituent pas des « boîtes à photons » parfaites. Si elles supportent en effet un

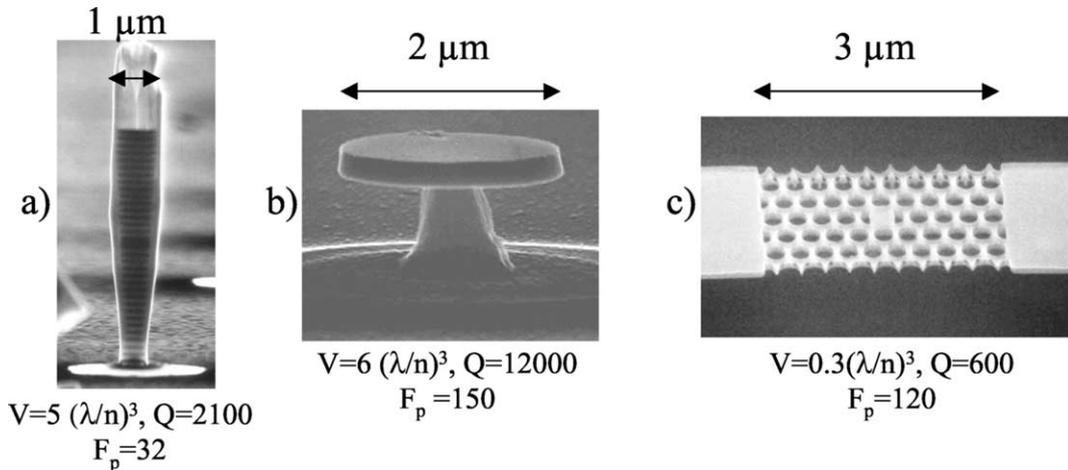


Figure 2. Vue au microscope électronique à balayage de quelques microcavités 3D fabriquées au CNRS/LPN. Nous indiquons des valeurs typiques pour Q et V , tirées de [7] pour les micropiliers GaAs/AlAs (a), [8] pour les microdisques (b), et [32] pour les cavités à base de cristal photonique (c).

Figure 2. Scanning electron micrograph obtained for several 3D microcavities fabricated at CNRS/LPN. We indicate typical values for Q and V , taken from [7] for GaAs/AlAs micropillars (a), [8] for GaAs microdisks (b), and [32] for photonic bandgap microcavities.

ensemble discret de modes résonants, confinés à 3D, elles possèdent par ailleurs un continuum de modes non-résonants. Le réalisation récente de cristaux photoniques 3D dans le domaine optique [34] change en profondeur – au moins conceptuellement – cet état de choses. Au cœur d'un tel cristal, la densité de modes non-résonants peut être rendue arbitrairement faible, tandis que l'introduction d'un défaut de forme et de taille contrôlées permet potentiellement de générer un ou quelques modes résonants de grand Q à la longueur d'onde visée.

Afin de comparer l'intérêt de ces différentes microcavités 3D pour le contrôle de l'émission spontanée, il est intéressant de considérer deux facteurs de mérite, leur facteur de surtension Q et leur volume modal V , dont quelques valeurs typiques sont indiquées dans la Fig. 2. Les microcavités semi-conductrices permettent – pour les modes résonants – de concentrer le champ électromagnétique dans un volume remarquablement faible ; on notera que l'amplitude du champ du vide au ventre du mode est de l'ordre de 10^5 V/cm pour un volume $V = (\lambda/n)^3$ lorsque $\lambda = 1 \mu\text{m}$. Leurs facteurs de surtension Q restent a contrario modérés, en dépit de progrès récents très nets dans ce domaine [8]. Rappelons que Q est proportionnel au temps d'échappement des photons hors de la microcavité ; ce temps est de l'ordre de 0,6 ps pour $Q = 1000$ et $\lambda = 1 \mu\text{m}$. Certaines microsphères en silice, de grand diamètre ($\sim 100 \mu\text{m}$), présentent des propriétés très différentes ; leur facteur de surtension peut atteindre 10^9 [6], mais le volume effectif de leurs modes est nettement plus grand ($V \sim 1000(\lambda/n)^3$). Pour des diamètres de l'ordre de quelques microns au contraire, leurs facteurs de mérite V et Q sont assez voisins de ceux des microdisques semiconducteurs [27].

Pour conclure, de nombreuses approches peuvent être utilisées pour fabriquer des microcavités 3D diélectriques de grand Q et de faible volume modal. La diversité de leurs propriétés permet d'envisager des applications différentes pour celles-ci. Tandis que les microsphères de grand Q constituent un système idéal pour observer un effet laser à très faible seuil [6], les microcavités semiconductrices de petit volume modal sont mieux adaptées à l'observation de l'effet Purcell ou du régime de couplage fort comme nous le verrons dans les prochaines sections, sous réserve qu'un émetteur solide adapté – tel qu'une BQ à basse température – soit utilisé.

4. Vers un régime de couplage fort pour une BQ unique en microcavité

Idéalement, le régime de couplage fort est réalisé lorsqu'un émetteur, initialement dans un état excité, est couplé de façon résonante et exclusive avec un mode d'une cavité électromagnétique sans pertes. L'émission spontanée devient alors un phénomène réversible, car un photon émis est réabsorbé avant qu'il ait pu quitter la cavité. Ce système décrit une oscillation de Rabi à la pulsation Ω donnée par l'expression suivante :

$$\hbar\Omega = |\vec{d} \cdot \vec{\epsilon}(\vec{r}_e)| \quad (1)$$

où \vec{r}_e désigne la position de l'émetteur, $\vec{\epsilon}$ est le champ pour un photon dans le mode de cavité et \vec{d} le moment dipolaire électrique de l'émetteur. Les états propres de ce système couplé sont des modes mixtes exciton-photon, dont les énergies sont séparées de $2\hbar\Omega$.

Dans la pratique, ce régime n'est observable que si tous les mécanismes induisant de la décohérence sont plus lents que l'oscillation de Rabi. Ce doit donc être le cas en particulier pour l'échappement du photon de la cavité, et pour l'émission spontanée de l'émetteur dans d'autres modes. En phase solide, d'autres phénomènes peuvent bien sûr jouer un rôle dominant pour l'émetteur. On peut prendre comme critère simple pour l'observation du régime de couplage fort en présence de décohérence la condition suivante :

$$2\hbar\Omega > \Delta E_{em} + \Delta E_{cav} \quad (2)$$

où ΔE_{em} et ΔE_{cav} désignent les largeurs spectrales de l'émetteur et du mode de cavité avant couplage.

Nous représentons Fig. 3 la variation du dédoublement de Rabi attendu pour une BQ d'InAs placée au ventre du mode de cavité en fonction du volume modal V de celui-ci.¹ On notera que le dédoublement

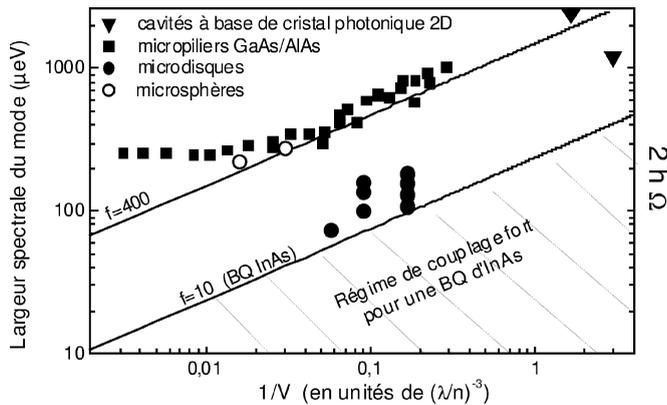


Figure 3. Représentation du dédoublement de Rabi estimé pour une BQ d’InAs au ventre du mode, et de la largeur de raie expérimentale du mode de cavité pour des micropiliers [7], microdisques [8,12], microsphères [27] et cavités à base de cristal photonique [32] en fonction du volume modal V de ces microcavités 3D.

Figure 3. Plot of the calculated vacuum Rabi splitting for a single InAs QD placed at the mode antinode, and of the experimental mode linewidth of micropillars [7], microdisks [8,12] and microspheres [27], as a function of the effective cavity volume V .

attendu prend des valeurs de l’ordre de 100 μeV , très grandes à l’échelle des valeurs usuelles pour des atomes ; ceci résulte de la combinaison du fort dipôle de la BQ et de la grande amplitude du champ du vide dans ces microcavités de petit volume modal. Le dédoublement de Rabi est en particulier beaucoup plus grand que la largeur homogène de la BQ à basse température. A contrario, on observe sur la Fig. 3 que les facteurs de surtension Q des microcavités semi-conductrices sont encore trop faibles à ce jour pour autoriser un régime de couplage fort. Les microsphères de silice de grand diamètre présentent quant à elles un Q largement suffisant, mais le dédoublement de Rabi attendu est plus faible que la largeur de raie de la BQ.

Dans ce contexte, les microdisques de grand Q obtenus par gravure chimique [8,12] offrent la voie la plus prometteuse, car il réalisent un bon compromis en termes de volume modal ($V \sim 6(\lambda/n)^3$) et de facteur de surtension ($Q \sim 12\,000$). Cependant, des calculs récents montrent que des cavités réalisées à partir de cristaux photoniques 2D pourraient après optimisation présenter des Q de l’ordre de 30 000 [35]. Ces deux systèmes devraient donc permettre d’observer le régime de couplage fort sur une BQ d’InAs unique dans un futur proche.

Une autre piste pourrait consister à employer une BQ présentant une plus grande force d’oscillateur, par exemple des BQs réalisées à partir de semiconducteurs II–VI [17,24,27], ou encore des BQs formées par les fluctuations d’épaisseur des puits quantiques dont la force d’oscillateur peut excéder 300. Dans ce dernier cas, le régime de couplage fort pourrait être observé dans les microdisques, les cavités à base de cristal photoniques ou encore les micropiliers actuellement disponibles [36].

5. Exaltation de l’émission spontanée et émission monomode

Comme nous l’avons montré dans la section précédente, les BQs d’InAs sont pour l’heure dans un régime de couplage faible lorsqu’on les place dans une microcavité : l’ES reste un phénomène irréversible. Dans ce régime, il est là aussi possible de modifier et de contrôler dans une très large mesure les propriétés d’un émetteur en changeant la densité de modes auxquels il est couplé, comme l’a proposé Purcell dès 1947 [37]. L’effet Purcell, ou exaltation du taux d’émission spontanée, a été le premier effet EDQC à être observé pour les atomes. L’emploi de BQs comme « atomes artificiels » a été la clef de sa mise en évidence en phase solide [7–12]. Pour comprendre ce point, il est important de rappeler les conditions de validité de

la fameuse formule posée par Purcell pour décrire le facteur d'exaltation de l'émission spontanée :

$$F_p = \frac{3Q(\lambda/n)^3}{4\pi^2 V} \quad (3)$$

Le facteur de Purcell F_p exprime le taux d'ES d'un émetteur *idéal* dans l'un des modes résonants d'une microcavité 3D, référencé par rapport à son taux d'ES dans l'espace libre. F_p , qui ne dépend que de la longueur d'onde λ , de l'indice de réfraction n au ventre du mode, du volume modal V et du facteur de surtension Q du mode de cavité est un facteur de mérite pour la cavité seule. Pour que la formule de Purcell s'applique, cet émetteur idéal doit être placé au ventre du mode confiné et avoir un dipôle parallèle au champ électrique local. Il doit de plus avoir une émission quasi-monochromatique (à l'échelle de la largeur spectrale du mode) et être parfaitement en résonance avec le mode de cavité. Si la condition de quasi-monochromaticité n'est pas satisfaite, $1/Q$ devra être remplacé dans l'expression (1) par $1/Q + 1/Q_{em}$ où le facteur de qualité de l'émetteur est défini par analogie avec Q par $E/\Delta E_{em}$. On voit donc que l'effet Purcell est négligeable pour les émetteurs de grande largeur spectrale, et que la condition $Q < Q_{em}$ définit, pour un émetteur donné, quelles microcavités permettent de modifier efficacement le taux d'émission spontanée de celui-ci. Grâce à leur très faible largeur spectrale à basse température, les BQs d'InAs permettent de tirer pleinement parti des microcavités semiconductrices sur ce plan.

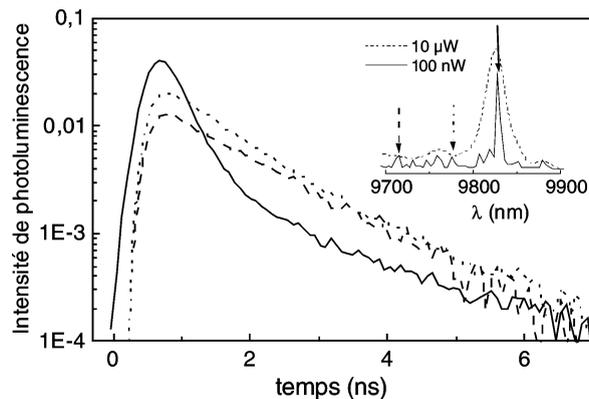
L'effet Purcell a été observé tout d'abord par le biais d'expérience de photoluminescence résolue en temps réalisées sur des ensembles de BQs placées au cœur de micropiliers ($\times 5$ [7]), de microdisques ($\times 13$ [8]) ou de structures très proches des lasers à cavité verticale ($\times 2,3$ [9]). Dans ces expériences, le facteur d'exaltation de l'émission spontanée mesuré est nettement plus faible que F_p (30 pour les piliers, 120 pour les microdisques), à cause de la distribution spatiale et spectrale des BQs par rapport au mode de cavité considéré. Ce résultat est peut être expliqué de façon quantitative en réalisant une moyenne statistique de l'amplitude de l'effet Purcell pour les BQs couplées au mode [7,8].

L'étude de l'effet Purcell pour des BQs uniques placées dans un micropilier [10,11], ou dans un microdisque [12] a été abordée plus récemment. Nous présentons à titre d'exemple dans la Fig. 4 des spectres résolus en temps obtenus pour un micropilier de section circulaire de 1 μm de diamètre contenant quelques BQs. La dépendance linéaire des différentes raies de photoluminescence observées en régime de faible excitation confirme qu'elles correspondent à des raies X de BQs distinctes. Pour un tel pilier, il est possible de comparer directement les propriétés de BQs qui sont en résonance ou en dehors de la résonance avec le mode fondamental du micropilier. Les BQs hors-résonance, qui ne sont couplées radiativement

Figure 4. Déclin de photoluminescence résolu en temps pour trois BQs placées en résonance (ligne continue) ou hors résonance (tirets) avec le mode fondamental d'un pilier de 1 μm de diamètre ($Q = 400$, $F_p = 6$). En insert : spectre de photoluminescence de ce micropilier montrant la distribution des BQs (faible excitation) et le mode de cavité (forte excitation).

Figure 4. Time resolved PL profiles for three isolated QDs, either placed on-resonance (solid line) or out-of-resonance (dashed lines) with the fundamental cavity mode of a 1 μm diameter micropillar ($Q = 400$, $F_p = 6$).

Inset: PL is used to probe both the distribution of isolated QDs (weak excitation) and the cavity mode (strong excitation).



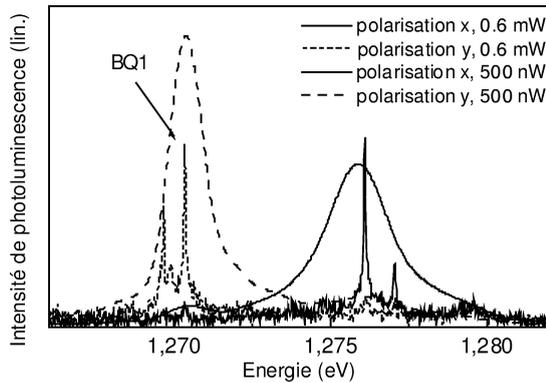


Figure 5. Spectres de photoluminescence résolus en polarisation pour un micropilier elliptique ($1,5 \mu\text{m} \times 0,7 \mu\text{m}$) contenant quelques BQs.

Figure 5. Polarization-resolved microPL spectra for an elliptical micropillar ($1.5 \mu\text{m} \times 0.7 \mu\text{m}$) containing few QDs.

qu'au continuum de modes non-résonants du micropilier, présentent une durée de vie radiative comparable à celles de BQs dans GaAs ($\sim 1,3$ ns). En dépit du modeste facteur de Purcell du micropilier étudié ($F_p = 6$), on observe une exaltation très nette du taux d'ES de la BQ en résonance spectrale avec le mode. Ce résultat montre que comme on s'y attend, l'amplitude de l'effet Purcell peut être plus grande pour une BQ unique que pour un ensemble de BQs, dès lors que celle-là est raisonnablement bien placée spatialement et spectralement par rapport au mode de cavité.

Jusqu'à présent, l'effet Purcell n'a été observé qu'à relativement basse température ($T < 50$ K). L'élargissement spectral de l'émission des BQs uniques est un obstacle important à l'exploitation de l'effet Purcell à température ambiante, par exemple pour réaliser des diodes électroluminescentes rapides. Au moins à court terme, l'effet Purcell ne sera ainsi probablement pas employé pour accélérer l'ES, mais plutôt comme un moyen de collecter efficacement l'ES dans un mode donné. Parce qu'il conduit à une exaltation *sélective* de l'ES de la BQ dans le mode de cavité, l'effet Purcell permet en effet de coupler préférentiellement dans ce mode les photons émis. Considérons par exemple la BQ de la Fig. 4, placée en résonance avec le mode ; son taux d'ES dans le continuum de modes non-résonants (donné par le taux d'ES des BQs hors résonance) est de l'ordre de $1/(1,3) \text{ ns}^{-1}$, tandis que son taux d'ES global est $1/(0,4) \text{ ns}^{-1}$. La fraction de l'ES qui est couplée au mode fondamental du micropilier est donc $\beta = 1 - (0,4/1,3) \sim 0,7$. Pour des micropiliers de plus grand facteur de Purcell ($F_p > 30$), on peut espérer des coefficients β de couplage de l'ES au mode de cavité supérieurs à 0,95 [7,10].

De la même façon que l'effet Purcell peut être employé pour préparer la plupart des photons dans un même mode spatial, il peut être mis en œuvre pour contrôler la polarisation des photons émis. Nous présentons sur la Fig. 5 pour illustrer ce point des spectres de photoluminescence résolus en polarisation pour quelques BQs placées dans un micropilier de section elliptique. Cette forme anisotrope induit une biréfringence suffisante pour lever la dégénérescence de polarisation du mode fondamental des micropiliers à section circulaire ; ainsi, ces micropiliers présentent-ils un doublet de modes fondamentaux polarisés linéairement et de polarisations croisées [38]. Tandis que les BQs d'InAs dans GaAs n'ont pas de polarisation préférentielle marquée dans le plan xy , on observe sur la Fig. 5 que l'émission de BQs en résonance présente un fort degré de polarisation linéaire (plus de 90% dans les meilleurs cas), imposé par leur couplage préférentiel à un mode de microcavité polarisé [11].

6. Une source solide de photons uniques monomode

Une source de photons uniques est un composant capable d'émettre de façon déterministe des impulsions lumineuses contenant un photon et un seul. Une telle source aurait des applications importantes dans le domaine du traitement quantique de l'information [39] et les télécommunications quantiques. Il est bien connu que certains protocoles de communication basés sur un codage de l'information sur des photons uniques peuvent être intrinsèquement sûrs [40]. Jusqu'à présent cependant, ces protocoles n'ont été validés

qu'en utilisant comme source des diodes laser atténuées, qui ne constituent que des approximations très grossières de sources de photons uniques. La statistique du nombre de photons dans de telles impulsions suivant une loi poissonnienne, on voit que pour un flux moyen typique de 0,1 photons par impulsion, 90% des impulsions ne contiennent aucun photon – ce qui limite le débit de la liaison –, tandis que 1% des impulsions – soit 10% des impulsions utiles – contiennent deux photons ou plus, si bien que la sécurité de la liaison n'est plus garantie de façon inconditionnelle. Le développement d'une source solide de photons uniques (S2PU) est donc aujourd'hui un enjeu majeur.

Plusieurs approches peuvent être choisies pour réaliser une S2PU. La première consiste à utiliser le blocage de Coulomb pour injecter de façon contrôlée exactement un électron et un trou dans un puits quantique [41]. Cette méthode n'a été validée jusqu'ici qu'à très basse température ($T < 0,1$ K) et semble difficilement compatible avec une collection efficace des photons émis. Une seconde approche, aujourd'hui la plus étudiée, consiste à mettre en œuvre un émetteur unique. L'émission de photons uniques a été observée récemment pour des centres colorés [42], des molécules [43], ou des nanocristaux semiconducteurs [44] à *température ambiante*, ainsi que pour des BQ semiconductrices d'InAs [11,45,46] mais dans ce cas seulement à basse température ($T < 50$ K). Pour toute utilisation pratique d'une S2PU, il est nécessaire d'assurer une collection efficace des photons uniques émis. On pourra trouver une discussion des différentes approches possible dans un article de revue récent [47]. Un atout essentiel des BQs à basse température – émetteurs quasi-monochromatiques – réside bien sûr dans la possibilité d'utiliser une microcavité pour collecter et préparer les photons uniques dans un état donné. Cette fonction est essentielle dans le cadre des communications quantiques, puisqu'il est nécessaire, avant tout codage de l'information sur des photons uniques, de préparer ceux-ci dans un état initial donné. L'emploi d'une source de photons non polarisés entraînerait par exemple la perte de la moitié des impulsions lumineuses au cours de cette étape de préparation initiale. On remarquera que cette approche peut être en principe étendue à d'autres sources de photons uniques, mais là encore au prix d'un fonctionnement à basse température. L'effet Purcell a par exemple été observé récemment à 4 K sur des nanocristaux de CdSe [27] ; par ailleurs, des largeurs de raies suffisamment faibles pour autoriser un effet Purcell marqué (350 μeV à 6 K) ont été observées sur des molécules uniques piégées dans une matrice solide [48]. Parmi les autres atouts importants des BQs pour la réalisation d'une S2PU, on notera enfin qu'elles sont stables dans le temps contrairement aux molécules de colorant, ne sont pas affectées par le phénomène de clignotement contrairement aux nanocristaux, et peuvent faire l'objet d'un pompage électrique.

Sachant qu'il est possible de piéger plusieurs paires électron-trou dans une BQ d'InAs, il est nécessaire d'utiliser un protocole expérimental adapté pour éviter de générer des impulsions contenant plusieurs photons. Nous avons proposé de tirer parti de la forte interaction coulombienne entre les électrons et les trous piégés dans la BQ [49]. La BQ est excitée par un pompage impulsif non-résonant ; plusieurs paires électron-trou, photocréées dans la barrière de GaAs sont rapidement capturées par la BQ (~ 20 ps). On observe alors la recombinaison radiative séquentielle de ces paires ; chaque photon émis a une énergie spécifique, qui dépend du nombre de paires électron-trou présentes dans la BQ lorsqu'il est émis. Il suffit donc de réaliser un filtrage spectral de l'émission de la BQ pour préparer des impulsions lumineuses contenant un nombre de photons bien défini. En sélectionnant seulement la raie X de la BQ, on prépare par exemple une impulsion contenant (au plus) un photon.

La validité de cette approche simple a été vérifiée expérimentalement par plusieurs groupes de recherche au cours des derniers mois [11,45,46] par le biais d'expériences de corrélation de photons utilisant l'approche conventionnelle de Hanbury-Brown et Twiss. La Fig. 6 présente un histogramme de corrélation obtenu pour la raie X d'une BQ sous pompage impulsif. Un tel histogramme présente une série de pics dont la périodicité reflète le taux de répétition du laser exciteur. L'absence de pic de corrélation au voisinage de $t = 0$ montre que la BQ n'émet jamais deux photons dans la raie X en réponse à une impulsion excitatrice donnée. Lorsqu'on élève la température, ce protocole continue à fonctionner tant que la largeur spectrale des raies X et XX reste nettement plus faible que leur séparation spectrale. Pour les BQs d'InAs, nous avons pu générer des photons uniques à 50 K et une température de fonctionnement supérieure à 77 K

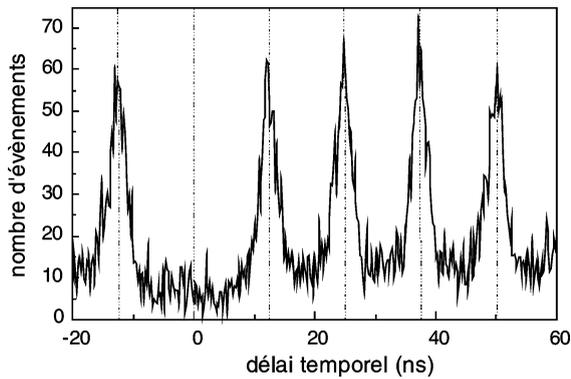


Figure 6. Histogramme des délais entre photons émis dans la raie X d'une BQ d'InAs à 8 K, pour une excitation impulsionnelle périodique.

Figure 6. Histogram of the time interval between emission events in the X line of a single InAs QD at 8 K under pulsed excitation.

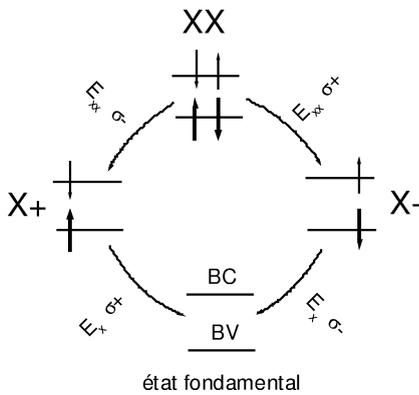


Figure 7. Schéma de principe de la génération d'une paire de photons à partir du biexciton dans une BQ. Les flèches fines (grosses) représentent les électrons (trous) de spin $\pm 1/2$ ($\pm 3/2$) occupant le premier niveau de conduction BC (de valence BV). L'énergie (E_{xx} ou E_x) et la polarisation circulaire ($\sigma+$ ou $\sigma-$) est indiquée pour chaque photon émis.

Figure 7. Sketch illustrating the generation of a photon pair from a biexciton in a QB. Thin (large) arrows represent spin $\pm 1/2$ ($\pm 3/2$) electrons (holes) in the first conduction band level BC (valence band level BV). The energy (E_{xx} ou E_x) and the polarisation ($\sigma+$ or $\sigma-$) is indicated for each optical transition.

semble accessible. Les BQs de semiconducteurs II–VI CdSe/ZnSe [14] devraient permettre de préparer des photons uniques jusqu'à 300 K, car la séparation spectrale entre les raies X et XX est de l'ordre de 20 meV dans ce système.

En sélectionnant spectralement à la fois les deux raies X et XX d'une BQ, on prépare des paires de photons fortement corrélés dans le temps [50]. Cette approche rappelle l'utilisation de cascades radiatives atomiques pour préparer des paires de photons dans un état intriqué de polarisation [51]. L'intrication des photons X et XX fait l'objet d'une conjecture [52] et fait l'objet de nombreux tests expérimentaux. Le principe de base en est rappelé Fig. 7. Le biexciton est un état parfaitement bien défini : lorsque deux paires électrons–trous occupent les premiers niveaux de conduction (spin $\pm 1/2$) et de trous lourds (spin $\pm 3/2$) de la BQ, la paire d'électron – comme la paire de trous – occupe un état singulet. Une paire électron–trou seule peut occuper quatre états différents, dont deux seulement, X+ et X–, satisfont aux règles de conservation du moment cinétique pour une recombinaison radiative et sont représentés dans la Fig. 7. La désexcitation du biexciton, avec émission de deux photons d'énergies et de polarisations complémentaires, peut donc suivre deux chemins différents. Pour les BQs d'InAs, la séparation énergétique éventuelle entre X+ et X– n'est pas résolue (cf. Fig. 1) ; ces deux chemins ne peuvent donc pas être distingués tant qu'on ne réalise pas une mesure de la polarisation des photons émis, ce qui satisfait la principale condition nécessaire pour l'intrication de leurs polarisations. Cette condition n'est cependant pas suffisante ; il faut en effet que les mécanismes de décohérence affectent suffisamment peu l'exciton, état intermédiaire dans cette cascade radiative, à l'échelle de sa durée de vie. L'étude d'excitons radiants préparés par excitation résonante a révélé que leur polarisation est parfaitement conservée pour des températures inférieures à 30 K [53], mais il faut noter que l'intrication des photons émis requiert de surcroît une conservation de la phase de l'exciton. Les mesures récentes du temps de déphasage T_2 montrent que celui-ci est nettement plus court que le temps

de recombinaison radiative dès que la température dépasse quelques kelvins [22]. Il est donc très probable que l'intrication de ces paires de photons ne puisse être observée qu'à des températures inférieures à 1 K. Jusqu'à 30 K, il sera par contre possible de générer des paires de photons corrélés du point de vue de leur polarisation, de leur énergie, et bien sûr temporellement.

En ce qui concerne la génération de photons uniques, on voit que le protocole proposé est parfaitement compatible avec l'emploi d'une microcavité pour collecter les photons émis. Un dégroupement très clair des photons émis par une BQ placée dans un micropilier a été observé [11] ; pour un même flux de photons, la probabilité d'émettre deux photons est cinq fois plus faible pour la BQ en microcavité que pour une source laser atténuée. L'insertion dans le micropilier procure une amélioration spectaculaire de l'efficacité de collection des photons uniques. Pour une BQ telle que BQ1, en résonance avec le mode de cavité *figure 5*, des mesures préliminaires montrent que plus de 40% des photons uniques sont collectés par notre dispositif expérimental. Pour mémoire, cette fraction est au mieux de 2% pour une BQ d'InAs dans une couche massive de GaAs, à cause de la réflexion totale interne de la lumière émise à l'interface entre GaAs et l'air.

On notera que l'efficacité de collection mesurée reste pour l'heure inférieure au coefficient de couplage β de l'ES au mode de cavité (70% pour BQ1). Il faut en effet noter que certains photons initialement émis dans le mode de cavité peuvent être perdus pour une microcavité non optimisée. C'est tout particulièrement le cas lorsque les micropiliers possèdent des DBRs très réfléchissants ; leurs pertes intrinsèques étant faibles, leurs propriétés sont alors très sensibles à l'existence de pertes extrinsèques additionnelles. Celles-ci sont en pratique de deux types, l'absorption résiduelle des couches diélectriques constituant la structure, et la diffusion par la rugosité des flancs gravés des micropiliers. Lorsque ces effets sont pris en compte, on peut montrer que pour des procédés de fabrication à l'état de l'art et une structure optimisée, l'efficacité de collection peut atteindre 70% [47].

Conclusion

Grâce à leurs propriétés optiques très spécifiques, les BQs semiconductrices présentent des atouts importants pour la génération d'états quantiques de la lumière et pour des expériences d'EDQC en phase solide. Au delà de l'effet Purcell et des propriétés associées tel que le couplage monomode de l'ES, les BQs en microcavité permettront vraisemblablement d'observer d'autres effets CQED tels que le régime de couplage fort. En régime de couplage faible, une BQ unique placée dans un micropilier de section anisotrope constitue une source solide de photons uniques, monomode et de grande efficacité. Ce composant est le premier d'une nouvelle classe de dispositifs optoélectroniques exploitant un effet EDQC, ici l'effet Purcell.

¹ La norme de $\vec{\varepsilon}$ au ventre du mode est reliée au volume V par l'expression $|\varepsilon|_{\max} = \sqrt{\hbar\omega/2V\varepsilon_0n^2}$.

Remerciements. Ce travail a été réalisé au CNRS/LPN à Bagnex, avec la participation de L. Ferlazzo-Manin, V. Thierry-Mieg, C. Dupuis et L. Couraud, et a été soutenu par le projet européen IST-FET «S4P».

Références bibliographiques

- [1] S. Haroche, D. Kleppner, Phys. Today 42 (1989) 24.
- [2] H. Benisty, J.M. Gérard, R. Houdré, J. Rarity (Eds.), Confined Photon Systems: Fundamentals and Applications, Springer-Verlag, Heidelberg, 1999.
- [3] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, Y. Arakawa, Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 3314.
- [4] H. De Neve, J. Blondelle, P. Van Daele, P. Demeester, R. Baets, Appl. Phys. Lett. 70 (1997) 799.
- [5] D.L. Huffaker, D. Deppe, Appl. Phys. Lett. 71 (1997) 1449.
- [6] V. Sandoghdar, F. Treussart, J. Hare, V. Lefèvre-Seguin, J.-M. Raimond, S. Haroche, Phys. Rev. A 54 (1996) R1777.
- [7] J.M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, E. Costard, V. Thierry-Mieg, Phys. Rev. Lett. 81 (1998) 1110.
- [8] B. Gayral, J.M. Gérard, B. Sermage, A. Lemaître, C. Dupuis, Appl. Phys. Lett. 78 (2001) 2828.

- [9] L.A. Graham, D.L. Huffaker, D.G. Deppe, Appl. Phys. Lett. 74 (1999) 2408.
- [10] G. Solomon, M. Pelton, Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 3903.
- [11] E. Moreau, I. Robert, J.M. Gérard, I. Abram, L. Manin, V. Thierry-Mieg, Appl. Phys. Lett. 79 (2001) 2865.
- [12] A. Kiraz, P. Michler, C. Becher, B. Gayral, A. Imamoglu, L. Zhang, E. Hu, Appl. Phys. Lett. 78 (2001) 3932.
- [13] L. Besombes, K. Kheng, D. Martrou, Phys. Rev. Lett. 85 (2000) 425.
- [14] V.D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, D. Hommel, Phys. Rev. Lett. 82 (1999) 1780.
- [15] K. Brunner, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Tränkle, G. Weimann, Phys. Rev. Lett. 73 (1994) 1138.
- [16] M.V. Artemyev, U. Woggon, Appl. Phys. Lett. 76 (2000) 1353.
- [17] X. Fan, P. Palinginis, S. Lacey, H. Wang, M.C. Lonergan, Opt. Lett. 25 (2000) 1600.
- [18] L. Goldstein, F. Glas, J.Y. Marzin, M.N. Charasse, G. Le Roux, Appl. Phys. Lett. 47 (1985) 1099.
- [19] J.M. Gérard, J.B. Génin, J. Lefebvre, J.M. Moison, N. Lebouché, F. Barthe, J. Cryst. Growth 150 (1995) 351.
- [20] J.M. Gérard, O. Cabrol, B. Sermage, Appl. Phys. Lett. 68 (1996) 1113.
- [21] R.J. Warburton, C.S. Dürr, K. Karrai, J.P. Kotthaus, G. Medeiros-Ribeiro, P.M. Petroff, Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 5282.
- [22] P. Borri, W. Langbein, S. Schneider, U. Woggon, R.L. Sellin, D. Ouyang, D. Bimberg, Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 157401.
- [23] J.Y. Marzin, J.M. Gérard, A. Izraël, D. Barrier, G. Bastard, Phys. Rev. Lett. 73 (1994) 716.
- [24] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, H. Mariette, Phys. Rev. B 63 (2001) 155307.
- [25] K. Matsuda, K. Ikeda, T. Saiki, H. Tsuchiya, H. Saito, K. Nishi, Phys. Rev. B 63 (2001) 121304.
- [26] L. Landin, M. Miller, M.E. Pistol, C.E. Pryor, L. Samuelson, Science 280 (1998) 262.
- [27] M.V. Artemyev, U. Woggon, R. Wannemacher, H. Jaschinski, W. Langbein, Nano Lett. 1 (2001) 309.
- [28] S.L. Mc Call, A.F.J. Levi, R.E. Slusher, H.H. Houch, N.A. Whittaker, A.C. Gossard, J.H. English, Appl. Phys. Lett. 60 (1992) 289.
- [29] E. Yablonovitch, J. Opt. Soc. Am. B 10 (1993) 283.
- [30] J. Jewell, A. Scherer, S.L. Mc Call, Y.H. Lee, S. Walker, J.P. Harbison, L.T. Florez, Electron. Lett. 25 (1989) 1123.
- [31] J.M. Gérard, D. Barrier, J.Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, T. Rivera, Appl. Phys. Lett. 69 (1996) 449.
- [32] O.J. Painter, A. Husain, A. Scherer, J.D. O'Brien, I. Kim, D. Dapkus, J. Lightwave Technol. 17 (1999) 2082.
- [33] H. Benisty, C. Weisbuch, D. Labilloy, M. Rattier, Appl. Surf. Sci. 164 (2000) 205.
- [34] S. Noda, K. Tomoda, N. Yamamoto, A. Chutinan, Science 289 (2000) 604.
- [35] J. Vuckovic, M. Lonkar, H. Mabuchi, A. Scherer, Phys. Rev. E, in press.
- [36] L.C. Andreani, G. Panzarini, J.M. Gérard, Phys. Rev. B. 60 (1999) 13276.
- [37] E.M. Purcell, Phys. Rev. 69 (1946) 681.
- [38] B. Gayral, J.M. Gérard, Appl. Phys. Lett. 72 (1998) 1421.
- [39] E. Knill, R. Laflamme, G. Millburn, Nature 409 (2001) 46.
- [40] C.H. Bennett, G. Brassard, A. Eckert, Sci. Am. 267 (1992) 50.
- [41] J. Kim, O. Benson, H. Kan, Y. Yamamoto, Nature 397 (1999) 500.
- [42] C. Kurtsiefer, S. Mayer, P. Zarda, H. Weinfurter, Phys. Rev. Lett. 89 (2000) 290.
- [43] Th. Basché, W.E. Moerner, M. Orrit, H. Talon, Phys. Rev. Lett. 69 (1992) 1516.
- [44] P. Michler, A. Imamoglu, M. Mason, P. Carson, G. Strouse, S. Buratto, Nature 406 (2000) 968.
- [45] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. Schoenfeld, P.M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu, Science 290 (2000) 2282.
- [46] C. Santori, M. Pelton, G. Solomon, Y. Dale, Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 1502.
- [47] W. Barnes, G. Björk, J.M. Gérard, P. Jonsson, V. Zwiller, Eur. Phys. J. D, in press.
- [48] T. Guillet, J. Berréhar, R. Grousson, J. Kovensky, C. Lapersonne, M. Schott, V. Voliotis, Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 87401.
- [49] J.M. Gérard, B. Gayral, J. Lightwave Technol. 17 (1999) 2089.
- [50] E. Moreau, I. Robert, L. Manin, V. Thierry-Mieg, J.M. Gérard, I. Abram, Phys. Rev. Lett. 87 (2001) 183601.
- [51] A. Aspect, G. Roger, S. Reynaud, J. Dalibard, C. Cohen-Tannoudji, Phys. Rev. Lett. 45 (1980) 617.
- [52] O. Benson, C. Santori, M. Pelton, Y. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. 84 (2000) 2513.
- [53] M. Paillard, X. Marie, P. Renucci, T. Amand, A. Jbeli, J.M. Gérard, Phys. Rev. Lett. 86 (2001) 1634.