



**HAL**  
open science

# Contrôle de l'émission spontanée de lumière par effets collectifs en présence d'un résonateur

Ilan Shlesinger

► **To cite this version:**

Ilan Shlesinger. Contrôle de l'émission spontanée de lumière par effets collectifs en présence d'un résonateur. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COMUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLO006 . tel-02155274

**HAL Id: tel-02155274**

**<https://pastel.hal.science/tel-02155274v1>**

Submitted on 13 Jun 2019

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

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

# Contrôle de l'émission spontanée de lumière par effets collectifs en présence d'un résonateur

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à l'Institut d'Optique Graduate School

École doctorale n°572 Ondes et Matières (EDOM)  
Spécialité de doctorat: Physique

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 23 mai 2019, par  
**Ilan Shlesinger**

Composition du Jury :

Agnès Maître Professeure, Sorbonne Université, Institut des Nanosciences de Paris	Présidente
Joël Bellessa Professeur, Université Claude Bernard, Institut Lumière Matière	Rapporteur
Rubén Esteban Research Fellow, Ikerbasque	Rapporteur
Alexia Auffèves Directrice de recherche, CNRS – Université Grenoble Alpes, Institut Néel	Examinatrice
Jean-Pierre Hermier Professeur, Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines, GeMAC	Examineur
Loïc Lanco Maître de Conférences, Université Paris Diderot, C2N	Invité
Jean-Jacques Greffet Professeur, Institut d'Optique Graduate School	Directeur de thèse



# Remerciements

Les quelques mots qui suivent me permettront de rendre hommage à toutes les personnes, cachées derrière le "Je" utilisé dans ce manuscrit, sans lesquelles ce travail n'aurait jamais été possible.

Je tiens tout d'abord à remercier Jean-Jacques Greffet, qui est à l'origine de ce projet, et qui m'a fait confiance pour le mener à bon port. Pendant ces trois années tu as toujours eu la porte ouverte, toujours prêt à être interrompu pour discuter. J'ai pu notamment bénéficier de ta compréhension extensive de la physique liée à ta facilité déconcertante pour la transmettre. Merci pour ton encadrement souple et efficace, pour ta confiance et pour ton honnêteté.

L'encadrement pendant la première moitié de ma thèse a été complété par François Marquier, qui a été un véritable support scientifique et moral, notamment pendant les périodes les plus compliquées.

Un apport inestimable est venu des collaborations avec Julien Moreau d'une part et avec Loïc Lanco et Pascale Senellart d'autre part. Tous trois m'ont ouvert sans hésiter une seconde la porte de leur laboratoire et ont partagé avec moi sans compter. J'ai eu aussi la chance de pouvoir bénéficier de l'aide de Jean-Paul Hugonin, maître du calcul numérique et source d'inspiration inépuisable.

Merci à Nick Schilder pour avoir posé les fondations de mon projet avec enthousiasme et optimisme, à Benjamin Vest pour m'avoir formé à la manip et pour les heures passées à mesurer du bruit avant d'obtenir les N00Ns, et à Hector pour m'avoir supporté pendant près de deux ans et à qui je souhaite la meilleure fin de thèse possible.

Merci à mes co-bureaux Emilie et Riccardo pour leur amitié sincère et leur motivation sans relâche. Vous avez été des points de repères fondamentaux à la fois dans les périodes sombres et les plus claires.

Ce travail a également bénéficié de discussions fructueuses avec Christophe Sauvan et Henri Benisty. Je tiens aussi à remercier tous les membres du groupe qui ont fait en sorte que les heures de RER valent la peine : Cheng my PhD brother, Léo, Marie-Christine, Cédric, Anton, Marta, Elise, Anne. Merci aussi à Philippe Ben-Abdallah et Mondher Besbes pour leur bonne humeur et leur gentillesse.

Un grand merci à toutes les personnes de l'institut qui ont été d'une aide précieuse durant ce travail : Antoine Browaeyns pour ses remarques de génie, Anne-Lise Coutrot

pour les dépôts et Ioana Doyen pour son aide expérimentale.

Ces années passées à l'institut n'auraient pas été les mêmes sans les personnalités uniques que sont Momo le grimpeur endurci, Sylvain le terrible et Martin au sourire éternel. J'ai eu aussi la chance de partager quelques années avec Vincent, Guillaume, Fred, Julia, Grogui, Pascal autour de coinches et de libanais.

Une aide plus indirecte mais tout aussi importante est venue de tous ceux qui ont su combler toutes mes heures entre le labo et le dodo, notamment le 4G et las potencias.

Merci à ma famille et surtout à ma sœur et à mes parents pour leur soutien infailible depuis plus de 27 ans, pour leur ouverture d'esprit et leur encouragements permanents qui m'ont permis d'en arriver là.

Et enfin, merci Chloé, sans qui tout cela n'aurait aucun sens.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement</b>	<b>13</b>
2.1	Le système . . . . .	14
2.2	États propres . . . . .	20
2.3	Bande passante réglable . . . . .	27
2.4	Non-linéarités accordables . . . . .	29
2.5	Blocage de photon accordable . . . . .	32
2.6	Résumé . . . . .	34
	<b>Annexes</b>	<b>35</b>
2.A	Deux systèmes à deux niveaux en interaction . . . . .	35
2.B	Couplage au mode de cavité et taux d'émission spontanée . . . . .	35
<b>3</b>	<b>Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence</b>	<b>37</b>
3.1	Le système . . . . .	39
3.2	Mise en forme spectrale et temporelle . . . . .	42
3.3	Mémoire quantique . . . . .	48
3.4	Mise en forme d'impulsion . . . . .	50
3.5	Résumé . . . . .	54
<b>4</b>	<b>Radiance sélective et coopérativité géante d'un état antisymétrique couplé à un mode plasmonique</b>	<b>55</b>
4.1	Radiance sélective plasmonique . . . . .	57
4.1.1	Coopérativité et facteur de Purcell généralisés . . . . .	59
4.1.2	Antenne plasmonique avec un mode antisymétrique . . . . .	62
4.2	Excitation efficace de l'état sous-radiant . . . . .	63
4.3	Exaltation du facteur de Purcell . . . . .	68
4.4	Discussion . . . . .	70
4.4.1	Système plasmonique anti-symétriques . . . . .	71
4.4.2	Robustesse au désaccord et au déphasage pur . . . . .	72

4.4.3	Influence du déphasage pur . . . . .	74
4.5	Résumé . . . . .	74
<b>Annexe</b>		<b>77</b>
4.A	Influence de la distance entre émetteurs . . . . .	77
<b>5</b>	<b>Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface</b>	<b>79</b>
5.1	Le couplage fort . . . . .	81
5.2	Les plasmons . . . . .	83
5.3	Les Nanoplaquettes . . . . .	86
5.4	Échantillons . . . . .	87
5.4.1	Indice effectif vu par le plasmon . . . . .	91
5.5	Expérience et résultats . . . . .	91
5.6	Simulation . . . . .	94
5.6.1	Fluorescence . . . . .	96
5.7	Discussion . . . . .	98
5.7.1	Comment augmenter le couplage? . . . . .	98
5.7.2	Effets collectifs avec peu d'émetteurs . . . . .	99
5.8	Résumé . . . . .	100
<b>Annexes</b>		<b>103</b>
5.A	Indice effectif de la couche de nanoplaquettes . . . . .	103
5.B	Moment dipolaire d'une nanoplaquette . . . . .	104
<b>Bilan et perspectives</b>		<b>107</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>111</b>

# Introduction

Cette thèse a pour fil conducteur l'étude de l'émission et de la diffusion de lumière par un émetteur, modélisé par un système à niveaux énergétiques quantifiés. En particulier, on va étudier comment le comportement d'un émetteur est modifié lorsqu'il est en présence d'autres émetteurs, et qu'il sont placés dans un environnement résonant. Dans ce chapitre nous allons présenter les principaux concepts utilisés, à travers un rappel historique de leur découverte.

De quoi dépend l'émission spontanée de lumière par un émetteur ? [Weisskopf et Wigner \[1930\]](#) montrent en 1930 que l'émission d'un photon par un système à deux niveaux provient de l'interaction avec un continuum de modes électromagnétiques du vide. Seize ans plus tard, [Purcell \[1946\]](#) met en évidence la modification du taux d'émission spontanée du système à deux niveaux lorsque la densité des états électromagnétiques avec lesquels il interagit est modifiée. Il est possible d'exalter l'émission spontanée du système à deux niveaux, en le couplant à un mode d'un résonateur décrit par une densité d'états plus élevée que celle des modes du vide. En 1954, [Dicke \[1954\]](#) montre que l'émission spontanée d'une assemblée d'émetteurs dépend aussi de la distance entre ceux-ci. Lorsque  $N$  émetteurs, très distants les uns des autres par rapport à la longueur d'onde de transition, sont tous excités à un instant donné, l'intensité de la lumière émise suit une décroissance exponentielle avec un temps caractéristique égal à l'inverse du taux d'émission d'un atome unique. Maintenant, si la distance interatomique devient inférieure à la longueur d'onde, alors la lumière est émise plus rapidement, et de façon plus intense. Il y a apparition d'un pic d'émission de durée caractéristique  $N$  fois plus courte que le temps d'émission d'un atome unique. Ce phénomène appelé superradiance provient de la création d'une corrélation entre les différents atomes pendant le processus d'émission [[Gross et Haroche, 1982](#)]. Il est dû à l'indiscernabilité du processus d'émission entre des atomes résonants placés à proximité. Classiquement, ce processus peut être vu comme l'interférence constructive du champ émis par  $N$  dipôles oscillant en phase. Ainsi, bien que la densité des modes électromagnétiques ne soit pas modifiée, le taux d'émission n'est plus le même.



## 1 Introduction

Pour relier ces deux phénomènes, à priori différents, de modification de la durée de vie radiative par effet Purcell ou par effets collectifs, plutôt que de parler des fluctuations du vide, il est possible d'adopter le point de vue de la réaction de rayonnement [Milonni, 1984]. Plus précisément, il est possible d'interpréter l'émission spontanée comme l'interaction entre l'émetteur avec le champ qui l'éclaire. Dans le cas de l'effet Purcell, le champ éclairant est le champ du mode excité par l'atome lui même. Dans le cas d'un état superradiant, le champ éclairant est celui des modes excités par les  $N$  émetteurs. Dans les deux cas, l'effet Purcell et la superradiance proviennent tous deux de l'exaltation du terme de couplage avec un ou plusieurs modes électromagnétiques donnés. Dans l'approximation dipolaire, ce terme de couplage s'écrit  $g = \frac{dE}{\hbar}$ , où  $d$  est le moment dipolaire de transition, et  $E$  est le champ électrique du mode à la position de l'émetteur. L'effet Purcell est obtenu en augmentant la valeur du champ, en le confinant spatialement ou spectralement, alors que la superradiance est obtenue en augmentant le dipôle effectif. Depuis leur découverte, ces deux phénomènes ont chacun été étudiés et mis à profit dans une myriade de systèmes et sur quasiment tous les types d'émetteurs de lumière existants. Ils sont tous deux reliés par un paramètre appelé la coopérativité.

Pour le voir nous allons tout d'abord retrouver l'expression du facteur de Purcell. La dérivation de Purcell est basée sur la règle d'or de Fermi, qui énonce que le taux d'émission spontanée d'un émetteur est proportionnel à la densité d'états du continuum auquel il est couplé. Le facteur de Purcell est donc égal au rapport entre la densité d'états d'un résonateur et la densité d'états du vide. Pour un résonateur lorentzien de facteur de qualité  $Q$  et de fréquence propre  $\omega$ , la densité d'états par unité de volume à résonance s'écrit  $2Q/(V\pi\omega)$ , où  $V$  est le volume modal du résonateur. En normalisant cette densité par celle du vide  $\omega^2/(3\pi^2c^3)$ <sup>1</sup>, on obtient le facteur de Purcell

$$F_P = \frac{3\lambda^3 Q}{4\pi^2 V}. \quad (1.1)$$

La première remarque importante est de noter que, par définition, le facteur de Purcell ne dépend que des propriétés du résonateur, et non pas du dipôle de l'émetteur. On y reviendra par la suite.

Une deuxième approche consiste à voir le facteur de Purcell comme une mesure de la densité optique de l'ensemble des systèmes à deux niveaux dans la cavité [Marquier, Sauvan, et Greffet, 2017]. Pour la calculer, considérons une assemblée de  $N$  émetteurs dans un volume  $V$ . Le coefficient d'absorption de l'ensemble  $1/l_{\text{abs}}$  est donné par

---

1. Pour une polarisation donnée.

$\rho\sigma_{\text{abs}}$ , où  $\rho = N/V$  est la densité d'émetteurs, et  $\sigma_{\text{abs}}$  la section efficace d'absorption. Pour un système à deux niveaux sans pertes, cette section efficace d'absorption est une grandeur universelle donnée par  $3\lambda^2/(2\pi)$ . Supposons à présent que les atomes sont placés dans une cavité optique, de facteur de qualité  $Q$  et fréquence propre  $\omega$ . La durée de vie d'un photon dans la cavité est égale à  $Q/\omega$ , il parcourt alors une distance  $L = cQ/\omega$  avant de s'échapper de la cavité. Lorsque l'on compare cette distance de propagation à la longueur d'absorption de l'ensemble, on obtient la densité optique du système :  $L/l_{\text{abs}} = \frac{cQ}{\omega} \frac{N}{V} \frac{3\lambda^3}{2\pi} = N \frac{3\lambda^3}{4\pi^2} \frac{Q}{V} = NF_{\text{P}}$ . Pour obtenir une interaction déterministe entre un faisceau incident et une assemblée d'émetteurs en interaction avec un résonateur, il faut que la densité optique soit élevée, et donc que le facteur de Purcell soit grand.

L'étude des effets d'une assemblée d'atomes sur la transmission d'une cavité n'est pas récente. Dès les premiers travaux, le paramètre utilisé pour décrire l'effet des atomes sur la réponse du système n'est pas le facteur de Purcell mais un paramètre appelé la coopérativité. [Bonifacio et Lugiato \[1976\]](#) ont introduit ce paramètre, noté  $C$ , pour  $N$  atomes couplés à une cavité Fabry-Pérot, dans le cadre de l'étude de la bistabilité de la transmission. Il s'écrit :

$$C = \frac{2Ng^2}{\kappa\gamma}. \quad (1.2)$$

où  $g$  désigne la force d'interaction dipolaire,  $\gamma$  le taux d'émission d'un atome dans le vide, et  $\kappa = \omega/Q$  la largeur de la cavité. Ils précisent que la coopérativité quantifie à la fois la réaction de rayonnement due à la cavité, mais aussi les effets coopératifs. Il se trouve que la coopérativité peut être identifiée au facteur de Purcell, à un facteur  $2/N$  près. Pour voir cela il suffit d'introduire les formes explicites de l'énergie d'interaction entre un dipôle et le mode de cavité  $\hbar g = d\sqrt{\frac{\hbar\omega}{2V\epsilon_0}}$  et du taux d'émission spontanée dans le vide d'un atome  $\gamma = \frac{d^2\omega^3}{3\pi\hbar\epsilon_0c^3}$ . On obtient alors la relation :

$$F_{\text{P}} = \frac{2}{N}C \quad (1.3)$$

La coopérativité permet de retrouver, à un facteur 2 près, le facteur de Purcell lorsqu'on ne considère qu'un seul atome dans la cavité ( $N = 1$ ). Inversement, on peut se demander si la généralisation du facteur de Purcell pour un système à  $N$  atomes s'écrit comme  $N$  fois le facteur de Purcell à un atome. En effet, le passage d'un atome à  $N$  atomes modifie le dipôle effectif et donc le couplage au mode de cavité. La réponse n'est pas triviale puisque, comme on l'avait fait remarquer plus haut, le facteur de

## 1 Introduction

Purcell pour un atome ne dépend que des paramètres du résonateur, et non pas du dipôle atomique. Il apparaît donc que le passage d'un atome à plusieurs atomes dans une cavité ouvre la voie à diverses questions sur la description qu'il faut adopter pour rendre compte des effets collectifs. Dans l'exemple considéré ici, le facteur  $N$  de la coopérativité en procédant à deux simplifications implicites. D'une part les interactions entre émetteurs sont négligées, car ceux-ci sont éloignés entre eux d'une distance plus grande que  $\lambda$ , et donc interagissent chacun avec un continuum différent. D'autre part, il est supposé que tous les émetteurs se couplent au mode de cavité de façon identique. Dans ce cas, le facteur  $N$  va aussi apparaître dans le calcul du facteur de Purcell.

La richesse des phénomènes qui peuvent être obtenus dans les systèmes collectifs en cavité est démultipliée lorsque ces deux approximations ne sont plus vérifiées. C'est-à-dire, lorsque l'interaction avec la cavité est différente pour chaque émetteur. Et lorsque les émetteurs interagissent à la fois avec le mode de cavité, mais aussi directement entre eux. Par exemple il sera possible d'interagir avec l'état sous-radiant des émetteurs, complémentaire de l'état superradiant, où l'émission des différents émetteurs interfère destructivement, et rallonge ainsi la durée de vie du système [Pavolini *et al.*, 1985].

L'objectif de cette thèse est d'explorer comment contrôler l'émission de lumière en utilisant à la fois les effets collectifs et les effets de cavité. Une première partie est consacrée à une étude théorique d'un système avec uniquement deux atomes couplés à un résonateur optique. Ce système, idéalement simplifié, permet de prendre en compte en détail les différents processus mis en jeu. Le système est étudié en régime de couplage faible, où le résonateur agit en tant que canal supplémentaire pour l'excitation et l'émission des atomes. Cette partie est divisée en trois chapitres. Dans les chapitres 2 et 3, on étudie deux boîtes quantiques, modélisées par des systèmes à deux niveaux, en couplage avec un mode d'une cavité Fabry-Pérot. Les deux boîtes quantiques sont placées à proximité de façon à ce qu'elles se couplent au même continuum, elles sont alors en interaction dipôle-dipôle, de telle sorte que le système est décrit par un état superradiant et un état sous-radiant. Tout d'abord on étudiera la modification de la non-linéarité et des effets de blocage de Coulomb photonique en utilisant les états superradiant et sous-radiant des deux atomes. Ensuite on verra comment l'état sous-radiant permet d'obtenir une nouvelle génération de sources de photons efficaces et modulables. Dans le dernier chapitre, les deux boîtes quantiques sont couplées à un résonateur plasmonique. Ce dernier va permettre d'obtenir des modes avec des symétries spatiales différentes par rapport aux ondes planes du continuum. On verra qu'il est alors possible d'exciter efficacement l'état

sous-radiant et ainsi obtenir une exaltation de l'effet Purcell, tout en conservant un état spectralement étroit. La deuxième partie de cette thèse est une étude expérimentale des processus d'émission de lumière collective en présence d'un résonateur. Le but est de contrôler l'émission d'une assemblée d'émetteurs, grâce au couplage d'un état superradiant à un même mode photonique. Pour ce faire on utilise des émetteurs colloïdaux en forme de nanoplaquettes [Ithurria *et al.*, 2011]. Ceux-ci se comportent comme des puits quantiques en solution, et présentent des grandes forces d'oscillateur. Le résonateur optique adapté que l'on utilise est un plasmon de surface. On démontre le couplage fort entre une assemblée de nanoplaquettes et un plasmon à la surface d'une couche mince d'or [Bellessa *et al.*, 2004]. Le couplage fort permet d'obtenir une émission cohérente de l'état superradiant des nanoplaquettes à travers le mode plasmonique [Aberra Guebrou *et al.*, 2012], et peut être étendu pour contrôler la polarisation et la directivité du champs émis.



## Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

### Introduction

Depuis la démonstration du contrôle de l'émission spontanée par Purcell [1946], les interfaces entre photons et atomes n'ont cessé de progresser jusqu'à obtenir de nos jours des architectures proches de l'idéal [Somaschi *et al.*, 2016] qui, pour certaines, permettent d'ores et déjà la réalisation de sources d'états quantiques commerciales [Giesz, 2017]. Ces systèmes sont dans la grande majorité des cas basés sur un émetteur unique, que ce soit un atome froid [Guendelman *et al.*, 2014; Reiserer *et Rempe*, 2015; Tiecke *et al.*, 2014], un qubit supraconducteur [Astafiev *et al.*, 2010; Hoi *et al.*, 2011], un centre coloré [Sipahigil *et al.*, 2016] ou une boîte quantique [Giesz *et al.*, 2016; Bennett *et al.*, 2016; Wang *et al.*, 2017], à chaque fois placés à l'intérieur d'une cavité.

L'étude des effets collectifs entre un nombre réduit, et donc contrôlé, d'émetteurs s'est déroulé en parallèle à celui de l'électrodynamique quantique en cavité [Devoe *et Brewer*, 1996; Eschner *et al.*, 2001; Ficek *et Tanaś*, 2002; Unold *et al.*, 2005; Abdussalam *et Machnikowski*, 2014; Angerer *et al.*, 2018]. L'expérience consiste à placer les émetteurs dans un volume sub- $\lambda$  [Dicke, 1954], ce qui conduit à l'apparition de modes collectifs [Schilder *et al.*, 2016] par couplage à travers les modes du vide en champ proche. A la différence des expériences utilisant une grande assemblée d'émetteurs, le fait d'avoir un nombre mésoscopique d'atomes permet d'étudier en détail les interactions entre eux. C'est d'autant plus intéressant en cavité, où l'on peut par exemple mettre en évidence des effets qui ont lieu en parallèle et en compétition comme le couplage avec la cavité et le couplage direct entre émetteurs.

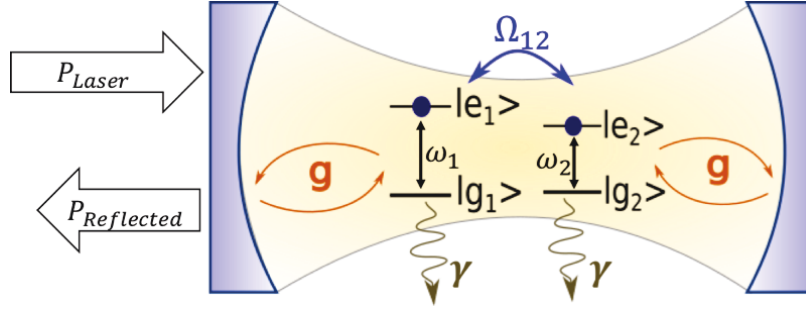
L'objet de ce chapitre est l'étude des effets collectifs en cavité avec un petit nombre d'émetteurs. Les difficultés expérimentales, n'ont permis d'étudier les effets collectifs en cavité, avec un nombre contrôlé d'atomes, que récemment [Fink *et al.*, 2009; Van Loo *et al.*, 2013; Casabone *et al.*, 2015; Reimann *et al.*, 2015; Neuzner

[et al., 2016](#); [Kim et al., 2018](#); [Evans et al., 2018](#)]. En effet, dans le domaine des atomes et ions naturels, les effets collectifs et la cavité sont difficiles à combiner dû à l'encombrement des miroirs de la cavité empêchant la manipulation des pièges atomiques. A l'état solide, la fabrication d'émetteurs identiques et leur positionnement contrôlé commence à voir le jour, notamment dans le domaine micro-onde [[Van Loo et al., 2013](#)], et plus récemment avec les centres colorés grâce à l'implantation par faisceau atomique [[Evans et al., 2018](#)]. Quant aux boîtes quantiques épitaxiées (BQ), les techniques de croissance permettent de contrôler leur position à l'échelle du nanomètre [[Masumoto et Takagahara, 2002](#)]. Les grandes différences de fréquence des BQs dues aux imprécisions de fabrication peuvent être compensées par l'application de contraintes extérieures : par exemple avec des déformations mécaniques [[Kuklewicz et al., 2012](#); [Elshaari et al., 2018](#)], thermiques [[Laucht et al., 2010](#)], ou par application d'un champ électrique ou magnétique [[Kim et al., 2011](#)]. Ces degrés de liberté externes, plus difficiles à implémenter pour les atomes et ions en cavité [[De Léséleuc et al., 2017](#)], rendraient possible l'exploration des effets collectifs de type [Dicke \[1954\]](#) en cavité. C'est-à-dire un couplage des émetteurs par interaction en champ proche, avec en simultané un couplage à un mode de cavité.

C'est le but de ce chapitre et du prochain où l'on va s'intéresser à un système de deux émetteurs en interaction placés dans une cavité. On s'appliquera à bien séparer les contributions des différents couplages en étudiant au préalable les différents sous-systèmes individuellement. On commencera par étudier le cas conventionnel de deux émetteurs indépendants couplés à un même mode de cavité avant de prendre en compte le couplage direct entre les émetteurs. Finalement on montrera que la possibilité de contrôler les fréquences propres des BQs par effet Stark différentiel, et notamment le désaccord fréquentiel entre les deux BQ, va permettre de modifier le comportement non-linéaire du système et sa bande passante sur des ordres de grandeurs.

### 2.1 Le système

Le système est présenté dans la figure [2.1](#). Les BQs sont définies par leur état fondamental  $|g_i\rangle$  et excité  $|e_i\rangle$  avec  $i = 1, 2$ , séparés par une énergie  $E_{|e_i\rangle} - E_{|g_i\rangle} = \hbar\omega_i$ . Le taux d'émission spontanée dans le matériau, hors mode de cavité, s'écrit  $\gamma$ . Il correspond aux pertes radiatives des BQs dans le continuum de modes du vide autres que le mode de cavité. Ces émissions ne sont donc pas collectées. Les BQs sont couplées au mode fondamental d'une cavité Fabry-Pérot, de fréquence  $\omega_c$ , avec un taux  $g$ ,



**Figure 2.1** – Schéma du système. Deux BQs, décrites comme des systèmes à deux niveaux, sont couplées au mode fondamental d'une cavité Fabry-Pérot avec une force de couplage  $g$ . Les deux BQs sont placées à 10 nm l'une de l'autre, de façon à ce qu'elles soient couplées par interaction dipôle-dipôle. Les deux paramètres importants sont la force de couplage dipôle-dipôle,  $\Omega_{12}$ , et le désaccord entre les deux BQs,  $\Delta_{12} = \frac{\omega_1 - \omega_2}{2}$ . Le taux d'émission spontanée de chaque BQ dans les modes à pertes est noté  $\gamma$  et peut varier en fonction du couplage dipôle-dipôle. Le système est excité par un laser continu qui pompe le mode de cavité.

considéré identique pour les deux BQs. Le taux de désexcitation du mode de cavité est  $\kappa = \kappa_{\text{left}} + \kappa_{\text{right}} + \kappa_{\text{autre}}$ . Les deux premiers termes traduisent les photons qui s'échappent par les miroirs, et le dernier traduit les pertes non désirées par les côtés. Pour obtenir un couplage critique avec le laser arrivant sur le miroir de gauche, il faut que  $\kappa_{\text{left}}/\kappa = 50\%$ . Par simplicité, et sans perte de généralité, on prendra une cavité symétrique,  $\kappa_{\text{left}} = \kappa_{\text{right}}$ , et  $\kappa_{\text{autre}} = 0$ . Le laser pompe la cavité avec une puissance  $P_{\text{laser}}$  arrivant sur le miroir et on mesure la puissance réfléchie  $P_{\text{reflec}}$ .

Le système équivaut à trois oscillateurs couplés deux à deux. Les systèmes à deux niveaux (TLS pour *two-level system* en anglais) peuvent donc interagir directement par dipôle-dipôle avec un taux  $\Omega_{12}$  ou indirectement à travers le mode de cavité. L'Hamiltonien décrivant le système est du type Tavis-Cummings [Tavis et Cummings, 1968] avec le couplage dipôle-dipôle additionnel [Lehmberg, 1970]. Dans le repère tournant à la fréquence du laser, avec l'approximation de l'onde tournante et en prenant  $\hbar = 1$  il s'écrit :

$$\begin{aligned}
 H = & (\omega_1 - \omega_L)\sigma_1^+\sigma_1 + (\omega_2 - \omega_L)\sigma_2^+\sigma_2 + (\omega_c - \omega_L)a^\dagger a \\
 & + i\sqrt{2}g \left( a^\dagger \frac{(\sigma_1 + \sigma_2)}{\sqrt{2}} - a \frac{(\sigma_1^+ + \sigma_2^+)}{\sqrt{2}} \right) \\
 & + \Omega_{12} (\sigma_1^+\sigma_2 + \sigma_1\sigma_2^+) - i\mathcal{E}_p(a^\dagger - a), \tag{2.1}
 \end{aligned}$$

avec  $\omega_i$ ,  $\omega_c$ , et  $\omega_L$  la fréquence propre de la  $i^{\text{ème}}$  boîte, de la cavité, et du laser



## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

respectivement.  $\sigma_i = |g_i\rangle\langle e_i|$  désigne l'opérateur désexcitation pour la  $i^{\text{ème}}$  boîte,  $a$  l'opérateur annihilation du mode de cavité,  $g$  la force de couplage entre chaque BQ et le mode de cavité,  $\Omega_{12}$  la force de couplage dipôle-dipôle, et  $\mathcal{E}_p = \sqrt{\frac{\kappa}{2} P_{\text{laser}} / \hbar \omega_L}$  la puissance du laser de pompe effectivement couplé à la cavité, en  $\sqrt{\text{photons/s}}$ . La première ligne de l'équation (2.1) correspond aux énergies propres des BQs et du mode de cavité. La deuxième décrit l'interaction entre les BQs et le mode de cavité. La dernière ligne décrit le couplage direct des deux BQs, et le pompage du mode de cavité par le laser continu.

L'interaction directe entre les deux boîtes provient simplement du couplage dû au champ produit par l'une sur l'autre, c'est-à-dire le couplage dipôle-dipôle. Le calcul quantique du terme d'interaction se fait en tenant compte du couplage de chaque émetteur aux mêmes modes électromagnétiques du vide. On obtient un résultat équivalent à celui dérivé de manière classique [Lyuboshitz, 1968]. Ainsi pour deux dipôles parallèles, la force de couplage s'écrit [Lehmberg, 1970; Ficek et Tanaš, 2002; Andrews et Bradshaw, 2004] :

$$\Omega_{12} = \gamma \operatorname{Re}\{F(kd)\}, \quad (2.2)$$

La fonction  $F$  a comme expression :

$$F(x) = -\frac{3}{4} e^{ix} \left[ \frac{1}{x} + \frac{i}{(x)^2} - \frac{1}{(x)^3} \right], \quad (2.3)$$

où  $d$  désigne la distance séparant les deux BQs, et  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  désigne le vecteur d'onde dans le matériau massif. Les paramètres que l'on utilise ici correspondent à ceux des BQs épitaxiées en InGaAs dans du GaAs :  $\lambda = 930 \text{ nm}/n_{\text{GaAs}}$  avec  $n_{\text{GaAs}} = 3,6$  [Palik, 1997]. La distance entre les deux boîtes est  $d = 10 \text{ nm}$ , et dans ce cas on peut négliger les termes en  $1/(kd)$  et  $1/(kd)^2$  :

$$\Omega_{12} \simeq \gamma \frac{3}{4 (kd)^3}. \quad (2.4)$$

La valeur de 10 nm est choisie suffisamment grande pour que le système ne soit pas en régime moléculaire avec délocalisation des électrons sur les deux boîtes et-pour que l'on puisse appliquer l'approximation dipolaire. Pour étudier l'évolution du système ouvert on utilise l'équation maîtresse qui décrit l'évolution dans le temps de la matrice densité du système des 2 BQs et du mode de cavité [Agarwal, 1975]. L'évolution

cohérente est décrite par le Hamiltonien de l'équation (2.1) :

$$\{\dot{\rho}\}_{\text{coh}} = i[\rho, H]. \quad (2.5)$$

Les interactions avec l'environnement sont quant-à-elles décrites simplement par des opérateurs de Lindblad qui apparaissent lorsque l'on trace l'équation de Schrödinger sur tous les modes du vide pour s'en débarrasser. Ils s'écrivent  $\mathcal{L}(\hat{\rho}) = \hat{\rho}\hat{\rho}^\dagger - \frac{1}{2}\hat{\rho}^\dagger\hat{\rho} - \frac{1}{2}\hat{\rho}\hat{\rho}^\dagger\hat{\rho}$  pour tout opérateur  $\hat{\rho}$  [Haroche et Raimond, 2006, § 4.3]. On va ainsi pouvoir décrire les phénomènes irréversibles de dissipation tout en préservant l'hermiticité de  $\rho$ . Ils constituent la partie incohérente de l'équation maîtresse, avec des processus qui font perdre les relations de phase. Pour le système considéré ils s'écrivent :

$$\{\dot{\rho}\}_{\text{incoh}} = \kappa\mathcal{L}(a) + \sum_i \left( \gamma\mathcal{L}(\sigma_i) + \gamma^*\mathcal{L}(\sigma_i^\dagger\sigma_i) \right). \quad (2.6)$$

Chaque élément du système couplé à l'environnement contient un terme de dissipation décrit par le Lindbladien de l'opérateur dissipation associé. Le premier terme correspond aux pertes de la cavité avec un taux  $\kappa$ , le deuxième à l'émission spontanée de la  $i$ -ème BQ dans les modes du vide (autre que le mode de la cavité) avec un taux  $\gamma$ . Le dernier terme décrit le déphasage pur des BQs, c'est-à-dire la probabilité, avec un taux  $\gamma^*$ , que les BQs perdent leur relation de phase due à l'interaction avec des phonons ou avec des charges électriques parasites. Les structures à l'état de l'art [Giesz et al., 2016; Snijders et al., 2016] permettent d'obtenir des déphasages purs négligeables et ils ne seront pas pris en compte par la suite, i.e.  $\gamma^* = 0$ .

En présence d'interaction dipôle-dipôle entre les BQs, leur taux d'émission dans l'environnement est modifié. En effet, les deux BQs ne se couplent plus à des réservoirs indépendants et il y a apparition de phénomènes d'interférences. Ces interférences sont décrites par l'ajout d'un terme supplémentaire dans l'équation (2.6), qui s'écrit [Lyuboshitz, 1968; Lehmberg, 1970; Agarwal, 1975] :

$$\gamma_{12} \sum_{i \neq j} \left( \sigma_i \rho \sigma_j^\dagger - \frac{1}{2} \sigma_j^\dagger \sigma_i \rho - \frac{1}{2} \rho \sigma_j^\dagger \sigma_i \right) \quad (2.7)$$

avec

$$\gamma_{12} = -2\gamma \text{Im}\{F(kd)\} \quad (2.8)$$

avec  $F(x)$  qui est donné dans l'équation (2.3). Dans l'approximation d'une faible

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

séparation entre les BQs,  $kd \ll 1$ , on a au second ordre en  $kd$  :

$$\gamma_{12} \simeq \gamma \left( 1 - \frac{1}{5}(kd)^2 \right). \quad (2.9)$$

La signification de l'équation (2.7) devient plus claire lorsque l'on regroupe tous les termes de dissipation et que l'on factorise<sup>1</sup> :

$$\begin{aligned} \{\dot{\rho}\}_{\text{incoh}} &= \kappa \mathcal{L}(a) + (\gamma + \gamma_{12}) \mathcal{L} \left( \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{2}} \right) + (\gamma - \gamma_{12}) \mathcal{L} \left( \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{\sqrt{2}} \right) \\ &= \kappa \mathcal{L}(a) + \gamma_+ \mathcal{L}(\sigma_s) + \gamma_- \mathcal{L}(\sigma_a), \end{aligned} \quad (2.10)$$

avec

$$\gamma_{\pm} = \gamma \pm \gamma_{12}. \quad (2.11)$$

On a introduit les opérateurs collectifs désexcitation symétrique  $\sigma_s$  et antisymétrique  $\sigma_a$  :

$$\sigma_s = \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{2}} \quad \sigma_a = \frac{\sigma_1 - \sigma_2}{\sqrt{2}}. \quad (2.12)$$

Ces opérateurs traduisent la désexcitation des deux BQs en phase ou en opposition de phase. L'influence de l'interaction dipôle-dipôle sur les taux de désexcitation dans les modes à pertes des BQs est maintenant plus facile à interpréter. Lorsque les BQs émettent en phase, ce qui est décrit par l'opérateur désexcitation symétrique  $\sigma_s$ , le taux d'émission est exalté de  $\gamma_{12}$  ; alors que lorsque les BQs émettent en opposition de phase, décrit par l'opérateur désexcitation antisymétrique  $\sigma_a$ , le taux est diminué de  $\gamma_{12}$ . De plus comme à faible distance  $\gamma_{12} \simeq \gamma$ , on obtient une inhibition presque totale de l'émission antisymétrique et un facteur 2 dans l'émission symétrique. On parle alors de sous-radiance et de superradiance.

Il est important de noter que les effets décrits par  $\Omega_{12}$  et par  $\gamma_{12}$  proviennent tous deux du fait que les BQs sont très proches et interagissent donc avec les mêmes modes du vide. Ils sont séparés en deux contributions uniquement dans le formalisme d'équation maîtresse avec  $\Omega_{12}$  signifiant une interaction cohérente entre les deux BQs qui permet de transférer un exciton d'une BQ à l'autre, et  $\gamma_{12}$  décrivant un phénomène d'interférence (constructive ou destructive) lors de l'émission spontanée dans l'environnement. Ces deux effets sont décrits par la même fonction  $F(x)$  :

$$\Omega_{12}(x) - i \frac{\gamma_{12}(x)}{2} = \gamma F(x) \quad (2.13)$$

---

1. Cf. annexe 2.A

qui n'est autre, à un facteur près, que le tenseur de Green appelé aussi fonction de réponse [Agarwal, 1975]. La partie réelle reflète un décalage en fréquence et la partie imaginaire une modification du temps de vie. Lorsque les BQs sont éloignées,  $kd \gtrsim 1$ ,  $F(kd)$  tend vers zéro, et donc  $\Omega_{12}$  et  $\gamma_{12}$  aussi. Finalement l'équation maîtresse s'écrit :

$$\dot{\rho} = i[\rho, H] + \kappa \mathcal{L}(a) + \gamma_+ \mathcal{L}(\sigma_s) + \gamma_- \mathcal{L}(\sigma_a).$$

Les paramètres utilisés seront ceux d'expériences de BQs épitaxiées en InGaAs placées dans des micropiliers [Somaschi et al., 2016], mais qui restent valables pour d'autres systèmes tels que ceux utilisant des centres colorés [Evans et al., 2018] ou des cristaux photoniques [Laucht et al., 2010]. Les valeurs sont  $\{g, \kappa, \gamma\} = \{20, 200, 0.6\} \mu\text{eV}$ , qui correspondent à un coopérativité élevée [Reiserer et Rempe, 2015]  $C = \frac{2g^2}{\kappa\gamma} = 7$ , mais tout de même en régime de couplage faible, ou de mauvaise cavité. Pour un déphasage pur négligeable, la coopérativité est simplement égale à la moitié du facteur de Purcell, qui est donné par le rapport entre le taux d'émission spontanée d'un TLS exalté par la cavité,

$$\Gamma_0 = \frac{4g^2}{\kappa}, \quad (2.14)$$

et le taux d'émission dans tous les autres modes  $\gamma$ . Ainsi pour une grande coopérativité, et donc pour un grand Purcell en régime de mauvaise cavité, l'émission de la BQ se fait majoritairement à travers le mode de la cavité et peut être efficacement sondé et collecté. Dans le système étudié ici, le facteur de Purcell vaut 14 et donc l'émission dans le mode de cavité sera 14 fois plus rapide que l'émission dans les autres modes. Par contre, comme on se place en régime de mauvaise cavité  $g \ll \kappa$ , il n'y a pas d'écart en fréquence ni d'oscillations de Rabi, les états du système peuvent être considérés de façon perturbative comme étant principalement excitoniques d'un côté ou photoniques de l'autre.

Après avoir posé les bases du modèle nous allons maintenant présenter les états propres du système en distinguant selon les différents cas. Les deux paramètres importants sont la différence de fréquence entre les deux BQs,  $\Delta_{12}$ , et la force d'interaction dipôle-dipôle  $\Omega_{12}$ . Les états du système vont fortement varier en fonction de ces deux paramètres.

## 2.2 États propres

Dans les systèmes fermés il est possible d'obtenir les états propres en diagonalisant le Hamiltonien du système. L'équation maîtresse ne pouvant pas être mise sous forme matricielle, nous allons utiliser un Hamiltonien perturbatif, ou Hamiltonien effectif [Cohen-Tannoudji, Dupont-Roc, et Grynberg, 2012, § 5.B.2], qui va donner une première idée des états propres du système. Cet Hamiltonien effectif peut-être obtenu simplement en rajoutant aux fréquences propres les parties imaginaires correspondant aux durées de vie des états propres. On se restreint à une excitation maximum dans le système pour obtenir une forme matricielle réduite. La base permettant de diagonaliser l'Hamiltonien d'interaction (2.1) entre les deux BQs est la base restreinte à une excitation  $\{|g,g,0\rangle, |- ,0\rangle = \frac{|e,g,0\rangle - |g,e,0\rangle}{\sqrt{2}}, |+,0\rangle = \frac{|e,g,0\rangle + |g,e,0\rangle}{\sqrt{2}}, |0,0,1\rangle\}$  où le numéro dans les kets indique le nombre de photons dans la cavité. Les opérateurs associés à cette base sont les opérateurs collectifs  $\sigma_a$  et  $\sigma_s$ , et l'opérateur annihilation  $a$ . On commence donc par ré-écrire l'Hamiltonien (2.1) en utilisant ces opérateurs :

$$H = (\omega_0 + \Omega_{12} - \omega_L)\sigma_s^\dagger\sigma_s + (\omega_0 - \Omega_{12} - \omega_L)\sigma_a^\dagger\sigma_a + (\omega_c - \omega_L)a^\dagger a + \Delta_{12}(\sigma_s^\dagger\sigma_a + \sigma_s\sigma_a^\dagger) + i\sqrt{2}g(a^\dagger\sigma_s - a\sigma_s^\dagger) - i\mathcal{E}_p(a^\dagger - a), \quad (2.15)$$

où l'on a introduit la fréquence moyenne des deux BQs  $\omega_0 = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2}$ . Les durées de vie sont données dans l'équation (2.10) en fonction des opérateurs utilisés dans cet Hamiltonien. L'Hamiltonien effectif est donc directement écrit dans la base  $\{|g,g,0\rangle; |- ,0\rangle; |+,0\rangle; |g,g,1\rangle\}$  comme :

$$H_{\text{eff}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\Omega_{12} - i\frac{\gamma_-}{2} & \Delta_{12} & 0 \\ 0 & \Delta_{12} & \Omega_{12} - i\frac{\gamma_+}{2} & -i\sqrt{2}g \\ 0 & 0 & i\sqrt{2}g & \omega_c - \omega_0 - i\frac{\kappa}{2} \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

Le terme de pompe n'est pas inclus pour la recherche de modes propres et le repère de référence est maintenant celui tournant à la fréquence moyenne des deux BQs,  $\omega_0$ . On peut voir immédiatement que l'état fondamental est état propre du système. L'état antisymétrique  $|- ,0\rangle$  est aussi état en absence de désaccord entre les deux BQs :  $\Delta_{12} \neq 0$ . On étudiera les différents cas de figure en fonction des valeurs de  $\Delta_{12}$  et  $\Omega_{12}$  dans les sections qui suivent. Avant cela, il est intéressant de préciser que l'on obtient le même Hamiltonien effectif en écrivant l'évolution temporelle des opérateurs  $\langle\sigma_a\rangle$ ,  $\langle\sigma_s\rangle$  et  $\langle a\rangle$  qui représentent les valeurs moyennes des dipôles collectifs et du champ en

cavité. En utilisant la relation  $\frac{\partial \langle \hat{\rho} \rangle}{\partial t} = \text{Tr}(\hat{\rho} \dot{\rho})$  on a :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \langle \sigma_a \rangle \\ \langle \sigma_s \rangle \\ \langle a \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\Omega_{12} - i\frac{\gamma_-}{2} & \Delta_{12} & 0 \\ \Delta_{12} & \Omega_{12} - i\frac{\gamma_+}{2} & -i\sqrt{2}g \\ 0 & i\sqrt{2}g & \omega_c - \omega_0 - i\frac{\kappa}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \sigma_a \rangle \\ \langle \sigma_s \rangle \\ \langle a \rangle \end{pmatrix}, \quad (2.17)$$

à condition de se placer dans l'approximation dite semi-classique où les valeurs moyennes des produits d'opérateurs sont factorisées et où le système est loin de la saturation. Ces équations sont exactes dans le cas de la fluorescence à un photon, cf. chapitre 3.

### BQs résonantes et sans couplage direct : $\Delta_{12} = 0$ et $\Omega_{12} = 0$

On commence par étudier le système avec des BQs identiques et sans couplage direct, c'est-à-dire éloignées, couplées chacune au même mode de cavité. C'est le cas d'école qui est étudié surtout théoriquement en régime de couplage fort [Tavis et Cummings, 1968; Armen et Mabuchi, 2006; Fink et al., 2009; Neuzner et al., 2016], avec quelques exemples expérimentaux en régime Purcell [Reimann et al., 2015; Casabone et al., 2015; Kim et al., 2018; Evans et al., 2018]. Comme on peut le voir dans le Hamiltonien effectif (2.16), les états  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  sont dégénérés et ont la même émission spontanée dans le vide  $\gamma$  (car  $\gamma_{12} = 0$ ). De plus l'état antisymétrique  $|-\rangle$  est état propre du système, il ne se couple pas à la cavité, on parle d'état sombre. L'état symétrique  $|+\rangle$  est couplé uniquement à la cavité avec un taux exalté  $\sqrt{2}g$  par rapport à une BQ unique :

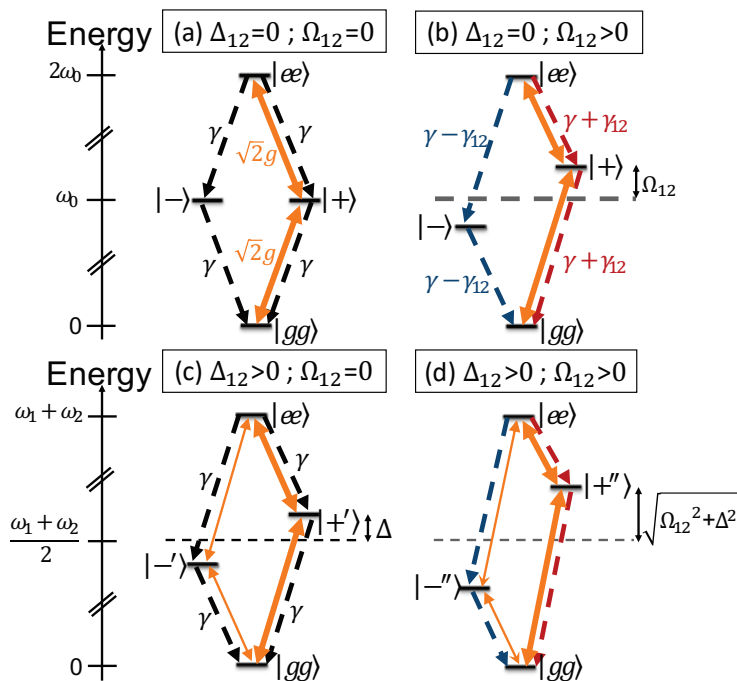
$$g_{|-\rangle} = 0, \quad g_{|+\rangle} = \sqrt{2}g. \quad (2.18)$$

Le diagramme d'énergie des états atomiques est représenté en figure 2.2(a).

### BQs identiques couplées par dipôle-dipôle : $\Delta_{12} = 0$ et $\Omega_{12} \neq 0$

L'introduction du couplage direct a deux conséquences, toutes deux sur les éléments diagonaux de la matrice effective collective. Tout d'abord il y a un décalage en fréquence égal à  $\pm\Omega_{12}$  pour les états  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  respectivement comme on peut le voir sur le diagramme 2.2(b). Ensuite les taux d'émission spontanée dans le vide de ces deux états est modifié de  $\pm\gamma_{12}$ . Ce sont les états sous-radiant,  $|-\rangle$ , et superradiant,  $|+\rangle$  de type Dicke. Par contre étant donné que le couplage avec le mode de cavité n'a

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement



**Figure 2.2** – Diagramme d'énergie pour les états des BQs.  $|ee\rangle$  et  $|gg\rangle$  représentent les états avec les deux BQs excitées ou à l'état fondamental. Les autres états sont les états intriqués et ils sont présentés dans le corps du texte. Les flèches en tirets représentent l'émission spontanée et les double flèches les couplage des états à travers le mode de cavité. (a)  $\Omega_{12} = 0, \Delta_{12} = 0$  : seul l'état symétrique  $|+\rangle$  est couplé à la cavité avec un taux  $\sqrt{2}g$ , l'état antisymétrique  $|-\rangle$  est sombre. Les deux états se désexcitent dans l'environnement avec un taux inchangé  $\gamma$ . (b)  $\Omega_{12} > 0, \Delta_{12} = 0$  : les BQs sont couplées par dipôle-dipôle. Les états propres sont encore les états symétrique et antisymétrique  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ , mais leur fréquence est décalée de  $\pm\Omega_{12}$  et l'émission spontanée dans le vide est modifiée de  $\pm\gamma_{12}$  respectivement. (c)  $\Omega_{12} = 0, \Delta_{12} \neq 0$  : le désaccord en fréquence modifie les états propres. Ils sont notés  $|+\rangle'$  et  $|-\rangle'$ . Les deux sont maintenant couplés à la cavité. En absence de couplage dipôle-dipôle les taux d'émission dans le vide sont inchangés et valent  $\gamma$ . Ces états vont en pratique se comporter comme des BQs indépendantes (cf. corps du texte). (d)  $\Omega_{12} > 0, \Delta_{12} \neq 0$  : les BQs en interaction dipôle-dipôle avec un léger désaccord fréquentiel. Les états propres  $|+\rangle''$  et  $|-\rangle''$  sont décalées en fréquence de  $\sqrt{\Omega_{12}^2 + \Delta_{12}^2}$ ; et ils sont tout deux couplés à la cavité. Leur désexcitation dans le vide est aussi modifiée.

pas changé, l'état  $|-\rangle$  reste un état sombre (non couplé à la cavité) alors que l'état  $|+\rangle$  garde son couplage accru  $\sqrt{2}g$ . On a donc les mêmes relations de force de couplage au mode que celles de l'équation (2.18).

### BQs non résonantes, sans couplage direct : $\Delta_{12} \neq 0$ et $\Omega_{12} = 0$

On étudie maintenant uniquement l'effet d'un (léger) décalage en fréquence entre les deux BQs. Pour cela on fixe à nouveau le couplage direct à 0. Les deux effets combinés seront étudiés au paragraphe suivant. Lorsque  $\Delta_{12} \neq 0$ , les états  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  ne sont plus états propres du sous-système atomique ; ils sont couplés effectivement par ce décalage en fréquence  $\Delta_{12}$  comme indiqué sur le Hamiltonien (2.15). Le décalage en fréquence produit un battement entre les deux BQs qui ne peuvent plus être décrites comme étant symétriques ou antisymétriques dans la durée. Ainsi un état initial symétrique deviendra antisymétrique au bout d'un temps de l'ordre de  $1/\Delta_{12}$ . Ce cas a été étudié dans le régime de couplage fort [Averkiev, Glazov, et Poddubnyi, 2009; Laucht et al., 2010; Albert et al., 2013; Radulaski et al., 2017; Evans et al., 2018], mais jamais en régime Purcell. Dans ce cas,  $g \ll \kappa$ , les nouveaux états propres peuvent se décomposer sur la base collective :

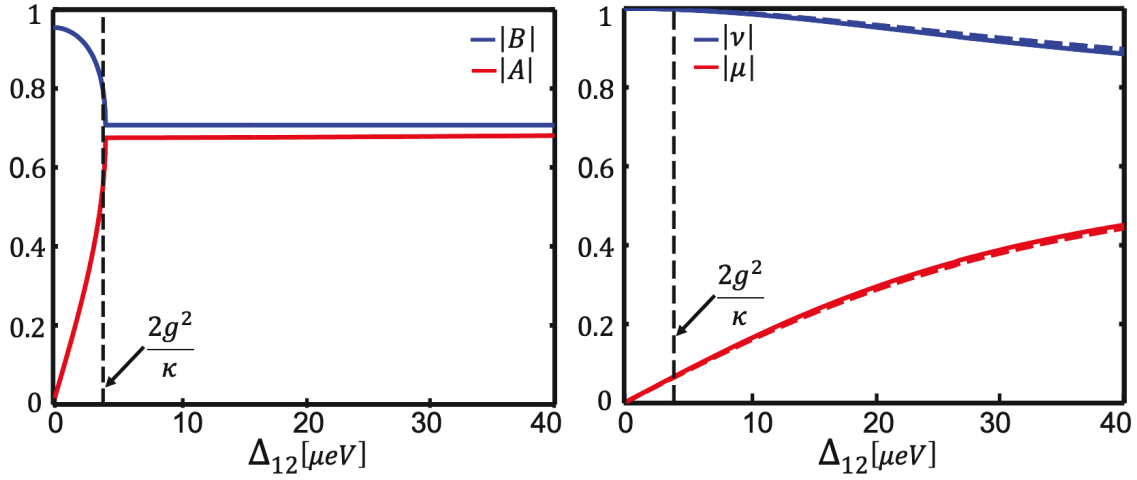
$$|-\prime\rangle \simeq A|+\rangle + B|-\rangle, \quad |+\prime\rangle \simeq B|+\rangle - A|-\rangle, \quad (2.19)$$

avec A et B des coefficients complexes qui dépendent de  $\Delta_{12}$ .<sup>2</sup> Les valeurs absolues des coefficients A et B en fonction du décalage en fréquence sont tracées sur la figure 2.3(a). Lorsque  $\Delta_{12} = 0$ ,  $A = 0$  et on récupère bien le cas du paragraphe précédent, à savoir des états propres complètement antisymétrique ou symétrique. Par contre pour tout  $\Delta_{12} > 0$ , on a  $|A|, |B| > 0$ . Ainsi les deux nouveaux états propres ont chacun une composante symétrique (et antisymétrique). Ce qui veut dire que les deux états peuvent à présent se coupler à la cavité : l'état sombre  $|-\rangle$  n'est plus tout à fait sombre. En regardant plus en détail on peut voir que deux régimes distincts apparaissent selon la valeur du décalage en fréquence. Pour  $\Delta_{12} < \frac{2g^2}{\kappa}$ ,  $|B|$  est plus élevé que  $|A|$  ; suivant l'équation (2.19) cela veut dire que  $|-\prime\rangle$  et  $|+\prime\rangle$  ont respectivement une composante antisymétrique et symétrique plus importante. En effet  $|B| = |\langle +|+\prime\rangle| = |\langle -|-\prime\rangle|$ . Inversement, pour  $\Delta_{12} > \frac{2g^2}{\kappa}$ ,  $|B| \simeq |A| \simeq \frac{1}{\sqrt{2}}$  ; les deux états ont perdu leur caractères symétrique et antisymétrique respectifs et se

2. A noter que l'Hamiltonien effectif n'étant pas hermitien les états ne sont pas exactement orthogonaux. De même, la partie photonique de ces modes est négligée.



## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement



**Figure 2.3** – Module des coefficients de la décomposition des états collectifs en fonction du désaccord entre les BQs. Gauche : pour deux BQs sans couplage direct, états collectifs  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  de l'équation (2.19). Droite : pour deux BQs en interaction directe, états collectifs  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  de l'équation (2.21). En absence de couplage direct (gauche), deux régimes distincts apparaissent : pour un faible désaccord  $\Delta_{12} < \frac{2g^2}{\kappa}$  les états effectifs  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  sont différents, le système est collectif, mais lorsque  $\Delta_{12} > \frac{2g^2}{\kappa}$ , les états collectifs sont perdus, les deux BQs agissent comme des BQs indépendantes. En présence de couplage direct (droite), les états collectifs  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  sont plus robustes au désaccord entre les deux BQs, et l'aspect collectif est maintenu pour des désaccords plus importants. En pointillés de couleur sont tracés les valeurs analytiques pour  $\mu$  et  $\nu$  données dans l'équation (2.23).

comportent comme des BQs indépendantes. Le désaccord en fréquence limite séparant ces deux régimes est

$$\Delta_{12} = \frac{2g^2}{\kappa} = \frac{\Gamma_0}{2}, \quad (2.20)$$

ce qui correspond au demi-taux d'émission spontanée accélérée par effet Purcell d'une BQ (émission à travers le mode de cavité). Ces deux régimes proviennent donc du fait que lorsque le désaccord total  $2\Delta_{12}$  entre les deux BQs est plus petit que le taux d'émission  $\Gamma_0$  d'une BQ dans la cavité, les deux BQs ont le temps de se coupler avant de se désynchroniser. En effet le seul moyen d'interaction sans couplage direct est le couplage à travers le mode de cavité. Il faut donc que le processus d'émission d'un photon par une BQ puis d'interaction avec la deuxième BQ soit plus rapide que le désaccord accumulé pendant ce temps. D'un point de vue fréquentiel, cela correspond simplement à dire que pour que les deux BQs interfèrent de façon cohérente, il faut qu'il y ait un recouvrement spectral. La largeur de chacune des deux BQs étant  $\Gamma_0$ , il

faut donc  $2\Delta_{12} < \Gamma_0$ . Ainsi, en régime Purcell, en absence de couplage direct, il n'est pas possible de s'adresser indépendamment à un des deux états collectifs. En effet, soit le désaccord est trop faible pour les séparer spectralement, soit le désaccord est trop grand et les BQs se comportent de façon indépendante. En résumé, l'introduction d'un désaccord entre les BQs permet de faire apparaître les deux modes antisymétrique et symétrique mais il faut en plus rajouter le couplage direct pour pouvoir lever la dégénérescence entre les deux états collectifs sans perdre l'aspect collectif. C'est ce qui est détaillé au paragraphe suivant.

### BQs non résonantes avec couplage dipôle-dipôle : $\Delta_{12} \neq 0$ et $\Omega_{12} \neq 0$

Comme on l'a vu, et comme indiqué sur l'Hamiltonien effectif (2.15), l'interaction dipôle-dipôle lève la dégénérescence des deux états collectifs superradiant  $|+\rangle$  et sous-radiant  $|-\rangle$  et conduit à un écart en fréquence entre eux. On peut donc a priori fixer la fréquence du laser pour venir exciter uniquement l'un des deux états collectifs. Cependant, pour deux BQs résonantes  $\Delta_{12} = 0$ , seul l'état superradiant se couple à la cavité (et donc à un éventuel laser). Comme on l'a vu, pour faire apparaître l'état sous-radiant il faut introduire aussi un désaccord fréquentiel. Ainsi tout comme au paragraphe 2.2, lorsque  $\Delta_{12} \neq 0$ , les nouveaux états propres sont modifiés et peuvent être décomposés dans la base collective :

$$|-\prime\rangle \simeq \mu |+\rangle + \nu |-\rangle, \quad |+\prime\rangle \simeq \nu |+\rangle - \mu |-\rangle, \quad (2.21)$$

avec  $\mu$  et  $\nu$  les nouveaux coefficients. Cette décomposition néglige encore une fois la composante du mode de cavité, approximation valable pour  $g \ll \kappa$ . Les valeurs absolues des coefficients sont tracées sur la figure 2.3(b) en fonction du désaccord  $\Delta_{12}$  entre les deux BQs. Comme on peut le voir, l'introduction d'un désaccord entre les deux BQs permet aux deux états d'avoir une partie symétrique et antisymétrique. Mais contrairement au paragraphe précédent,  $|\nu|$  reste plus important que  $|\mu|$  pour une plage de désaccord beaucoup plus grande. Ainsi, les états  $|-\prime\rangle$  et  $|+\prime\rangle$  seront donc décrits principalement par leur composante antisymétrique et symétrique respectivement sur une gamme de désaccord entre les deux BQs plus grande. Il est maintenant possible d'interagir séparément avec les deux états collectifs tout en gardant leurs propriétés distinctives. Pour préciser la gamme de fréquence accessible il est intéressant de regarder le sous-système atomique seul, et donc de diagonaliser la sous-matrice  $2 \times 2$

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

supérieure gauche de l'Hamiltonien effectif :

$$\begin{pmatrix} -\Omega_{12} - i\frac{\gamma_-}{2} & \Delta_{12} \\ \Delta_{12} & \Omega_{12} - i\frac{\gamma_+}{2} \end{pmatrix} \quad (2.22)$$

Des expressions analytiques simples dépendant uniquement du rapport entre  $\Delta_{12}$  et  $\Omega_{12}$  sont obtenues en négligeant les taux d'émission spontanée  $\gamma_{\pm}$  :

$$\mu = \frac{\delta}{\sqrt{\delta^2 + (1 + \sqrt{1 + \delta^2})^2}}, \quad \nu = \frac{1 + \sqrt{1 + \delta^2}}{\sqrt{\delta^2 + (1 + \sqrt{1 + \delta^2})^2}} \quad (2.23)$$

avec  $\delta = \frac{\Delta_{12}}{\Omega_{12}}$ . Ainsi  $|\nu| > |\mu|$  tant que  $\Omega_{12} \gtrsim \Delta_{12}$ . La force du couplage direct pour les deux BQs séparées de  $d = 10$  nm est calculée à partir de l'équation (2.4) et vaut  $\Omega_{12} = 31 \mu\text{eV}$ . Étant donné que la largeur de l'état est de l'ordre de  $\Gamma_0 = 4 \mu\text{eV}$  on pourra donc jouer sur  $\Delta_{12}$  sur plusieurs dizaines de largeurs des états tout en gardant des propriétés collectives sur les états propres. Les composantes analytique de l'équation (2.23) sont tracées (en valeur absolue) en tirets sur la figure 2.3(b) et sont en très bon accord avec les valeurs numériques, prenant en compte l'Hamiltonien effectif global. On peut en conclure qu'en régime Purcell, les états collectifs dépendent essentiellement du couplage direct  $\Omega_{12}$  et très faiblement du couplage à travers la cavité, ceci tant que  $\Omega_{12} > \Gamma_0$ .

A partir de ces facteurs de décomposition des états  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  on peut calculer les couplages de ces états au mode de cavité. Il faut partir du terme dans le Hamiltonien qui décrit le couplage entre BQs et mode de cavité :

$$i\sqrt{2}g(a^\dagger\sigma_s - a\sigma_s^\dagger). \quad (2.24)$$

Ce terme stipule que le couplage a lieu que avec les transitions symétriques des BQs. Pour obtenir les couplages avec les états  $|-\rangle$  et  $|+\rangle$  il faut exprimer  $\sigma_s$  en fonction de ces états. Tout d'abord on réécrit la définition de  $\sigma_s$  dans la base des états collectifs :

$$\sigma_s = |gg\rangle\langle +| + |+\rangle\langle ee|. \quad (2.25)$$

A partir de l'équation (2.21) on exprime  $|+\rangle$  en fonction des états qui nous intéressent  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$ <sup>3</sup> :

$$|+\rangle = \mu|-\rangle + \nu|+\rangle. \quad (2.26)$$

---

3. Valable uniquement si les coefficients  $\mu$  et  $\nu$  sont réels, donc pour  $\gamma \ll \Omega_{12}$

A partir de (2.25) et (2.26) on obtient directement les couplages effectifs des états sous-radiant et superradiant au mode de cavité (cf. annexe 2.B) :

$$g_{|-''\rangle} = \mu\sqrt{2}g, \quad g_{|+''\rangle} = \nu\sqrt{2}g. \quad (2.27)$$

Ces deux couplages dépendent directement des facteurs  $\mu$  et  $\nu$  et donc de  $\frac{\Delta_{12}}{\Omega_{12}}$ . Il va donc être possible de jouer directement sur le couplage au mode de cavité en modifiant la différence de fréquence entre les deux boîtes. Le paragraphe suivant montre en quoi cette accordabilité va être intéressante dans des architectures de communication quantique.

## 2.3 Bande passante réglable

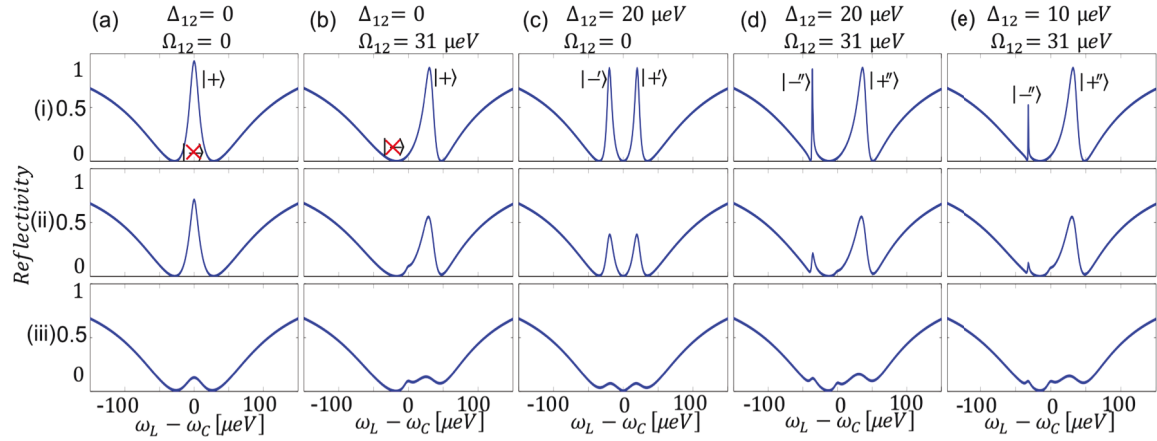
La section précédente a permis de détailler les différents états propres en fonction de la présence ou pas de désaccord et de couplage direct entre les BQs. On a notamment calculé le couplage des états collectifs au mode de cavité. Ce couplage au mode de cavité va déterminer la bande passante, i.e. la largeur en fréquence, de chaque état. En effet cette largeur va être égale au taux de désexcitation total de l'état excité. Pour une BQ seule en cavité il s'écrit [Lanco et Senellart, 2015]

$$\Gamma_{\text{total}} = \Gamma_0 + \gamma \simeq \Gamma_0, \quad (2.28)$$

où la deuxième égalité est valable lorsque l'émission est bien exaltée par effet Purcell. Avec  $\Gamma_0 = \frac{4g^2}{\kappa}$ , on voit que la largeur de l'état dépend directement du couplage au mode de cavité. On va présenter les bandes passantes des différents états en s'appuyant sur leur spectres de réflectivité. Tous les calculs ont été réalisés en utilisant la boîte à outil d'optique quantique sur MATLAB développée par Tan [1999]. Elle permet de résoudre numériquement l'équation maîtresse (2.14). Les spectres de réflectivité pour les quatre cas étudiés précédemment, correspondants aux diagrammes d'énergie de la figure 2.2, sont tracés sur la figure 2.4. On s'intéresse tout d'abord aux spectres de la première ligne qui correspondent au cas de faible puissance de pompe. Les spectres sont tracés en fonction de la fréquence du laser de pompe. Dans tous les cas on voit apparaître un creux de réflectivité qui correspond à la fenêtre de transmission de la cavité Fabry-Pérot. Les différents pics de réflectivité correspondent quant à eux aux états excitoniques.

Sur les deux premières colonnes on ne voit apparaître qu'un seul pic de réflectivité.

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement



**Figure 2.4** – Réflectivité en fonction de la fréquence du laser. Les colonnes présentent les cas avec les BQs : (a) à résonance et sans couplage direct ; (b) et (c) respectivement avec couplage direct ou désaccordées ; (d) avec à la fois du couplage direct et désaccordées ; (e) comme (d) mais avec un désaccord plus faible. Les lignes présentent les mêmes spectres avec trois puissances de laser croissantes : (i) 1 pW (ii) 1 nW et (iii) 10 nW. Les paramètres sont  $\{g, \kappa, \gamma\} = \{20, 200, 0.6\} \mu\text{eV}$ .

Il provient de l'état symétrique  $|+\rangle$ . Sa largeur est le double de celle d'une BQ unique :

$$\Gamma_{|+\rangle} = 2\Gamma_0 = \frac{8g^2}{\kappa}. \quad (2.29)$$

La présence de couplage direct (colonne (b)) ne fait que décaler l'énergie propre de cet état de  $+\Omega_{12}$ . Par contre l'état antisymétrique est sombre et n'apparaît pas.

Lorsqu'on introduit un désaccord en fréquence mais sans couplage direct (colonne (c)) on voit apparaître deux pics identiques. Ils correspondent au cas où les BQs se comportent comme des BQs uniques du fait d'une désynchronisation trop élevée par rapport au couplage indirect à travers le mode de la cavité. Leur largeur est donc égale à celle d'une BQ unique :

$$\Gamma_{|-\rangle} = \Gamma_{|+\rangle} \simeq \Gamma_0. \quad (2.30)$$

Le cas intéressant est visible sur la colonne (d), lorsque les deux BQs sont en interaction directes et désaccordées. On voit apparaître un pic très étroit et un pic large. Ils correspondent aux états  $|-\prime\rangle$  et  $|+\prime\rangle$  respectivement avec des largeurs égales à

$$\Gamma_{|-\prime\rangle} = \frac{4g_{|-\prime\rangle}^2}{\kappa} = \frac{\mu^2 8g^2}{\kappa}, \quad (2.31)$$

et

$$\Gamma_{|+\rangle} = \frac{4g_{|+\rangle}^2}{\kappa} = \frac{\nu^2 8g^2}{\kappa}, \quad (2.32)$$

avec  $\mu$  et  $\nu$  donnés à l'équation (2.23) et tracés sur la figure 2.3(b). Comme prévu, les deux états sont visibles, séparément, à travers le mode de cavité, avec en plus des réponses très différentes de celle d'une BQ unique. L'état  $|-\rangle$  est particulièrement intéressant, parce qu'il permet de parcourir toute la gamme de largeur de bande comprise entre 0 et  $\Gamma_0$  en fonction de la valeur de  $\mu$  et donc de  $\Delta_{12}$ . Un exemple est tracé sur la colonne (e) pour  $\Delta_{12} = 10 \mu\text{eV}$  au lieu de  $20 \mu\text{eV}$ . On peut voir que la largeur de l'état sous-radiant est encore plus étroite, et commence même à saturer. La saturation sera étudiée plus loin.

Ce qui est remarquable, c'est la possibilité d'accorder la largeur en fréquence du système sur plusieurs ordres de grandeur en jouant uniquement sur le désaccord  $\Delta_{12}$  entre les deux BQs. En effet les BQs en micropilliers possèdent des bandes passantes un à deux ordres de grandeur plus grandes que d'autres systèmes usuels tels que les atomes froids, les ions froids ou les circuits supraconducteurs [Guendelman *et al.*, 2014; Astafiev *et al.*, 2010; Hoi *et al.*, 2011; Devoe et Brewer, 1996]. L'importante accordabilité de l'état  $|-\rangle$  associée à l'accordabilité de son couplage au mode  $g_{|-\rangle}$ , permet de parcourir toute cette plage de largeur de bande. Ainsi à partir de faibles décalages en fréquence entre les deux BQs, il est possible de changer drastiquement  $\Gamma_{|-\rangle}$ . Par exemple, pour deux BQs séparées de 10 nm, si  $\Delta_{12} \in [3; 50] \mu\text{eV}$  on obtient des largeurs  $\Gamma_{|-\rangle} \in [0,038; 3,8] \mu\text{eV}$  : deux ordres de grandeur sont à la portée de main pour un désaccord de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$ .

## 2.4 Non-linéarités accordables

Le caractère non-linéaire intrinsèque aux systèmes à deux niveaux a de nombreuses applications pour la génération de lumière non-classique [Faraon *et al.*, 2008], la mesure non-destructive de photons [Imoto, Haus, et Yamamoto, 1985] et surtout pour la réalisation de transistors à photons uniques [Chang *et al.*, 2007; Hwang *et al.*, 2009]. Les systèmes de BQs en micropilier ont permis d'obtenir des valeurs records de seuil de non-linéarité de 0,3 photon par pulse [De Santis *et al.*, 2017]. Dans ce paragraphe on va voir comment le seuil de non-linéarité du système peut être modifié sur des ordres de grandeurs grâce à nouveau au désaccord entre les deux BQs. En régime stationnaire la saturation d'un système à deux niveaux en cavité est décrite par le seuil critique de photons, qui correspond au nombre moyens de photons qu'il faut dans la cavité pour

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

saturer la transition. En absence de déphasage pur, il est donné par [Kimble, 1994] :

$$n_{c_0} = \frac{\gamma^2}{8g^2}. \quad (2.33)$$

Ce seuil de non-linéarité dépend donc du rapport entre l'émission spontanée dans le vide (hors mode de cavité) et du couplage au mode de cavité. On va transposer cette expression aux états collectifs pour déterminer leur seuil de saturation pour les différents cas étudiés. On va s'appuyer sur les lignes restantes de la figure 2.4, qui représentent encore une fois les spectres de réflectivité mais avec des puissances laser incidentes plus intenses :  $P_{\text{laser}} = 1 \text{ pW}$  sur la ligne (i),  $P_{\text{laser}} = 1 \text{ nW}$  sur la ligne (ii), et  $P_{\text{laser}} = 10 \text{ nW}$  sur la (iii). Au fur et à mesure que les BQs vont saturer, elles vont moins interagir avec la cavité et le laser sera donc transmis. Ce qui se traduit par une décroissance de la hauteur du pic de réflectivité. Plus le seuil de saturation sera faible, plus le pic va décroître rapidement en fonction de la puissance incidente. Le cas de la colonne (c) avec les deux BQs non résonantes et sans interaction directe est utilisé en tant que référence puisque, comme démontré au paragraphe 2.2, dans ce cas là, les BQs agissent comme des BQs uniques indépendantes. On peut donc immédiatement donner le seuil de saturation de ces états :

$$n_{c_{|-'\rangle}} = n_{c_{|+\rangle}} \simeq n_{c_0}. \quad (2.34)$$

Dès la deuxième ligne de la figure 2.4, on peut voir que tous les états de type symétrique sont moins saturés que les BQs uniques, et inversement que les états antisymétriques le sont plus. Commençons par les états symétriques. L'état  $|+\rangle$  de la première colonne, où les BQs sont résonantes et sans couplage direct, est le moins saturé de tous. En effet cet état ne se comporte pas comme un système à deux niveaux effectif dans le sens où la transition  $|gg\rangle \leftrightarrow |+\rangle$  est résonante avec  $|+\rangle \leftrightarrow |ee\rangle$  : après absorption d'un photon, l'état  $|+\rangle$  va donc pouvoir continuer à absorber des photons de la pompe à la même fréquence pour aller peupler l'état doublement excité  $|ee\rangle$ . Il va donc falloir plus de puissance pour saturer le système. Par contre, la levée de dégénérescence due au couplage direct fait que les modes superradiants et sous-radiants se comportent comme des TLS effectifs. On peut ainsi calculer les seuils de photons critiques comme pour un TLS unique. Il faut pour cela calculer les taux d'émission spontanée dans le

vide pour ces états. Le calcul est réalisé en annexe 2.A et on obtient <sup>4</sup> :

$$\begin{aligned}\gamma_{|-''\rangle} &= \mu^2(\gamma + \gamma_{12}) \simeq 2\mu^2\gamma \\ \gamma_{|+''\rangle} &= \nu^2(\gamma + \gamma_{12}) \simeq 2\nu^2\gamma.\end{aligned}\tag{2.35}$$

Les seuils de photons critiques pour ces modes s'écrivent alors en remplaçant  $\gamma$  et  $g$  dans l'équation (2.33) avec leur valeur pour chaque état collectif :

$$n_{c_{|-''\rangle}} = \frac{\gamma_{|-''\rangle}^2}{8g_{|-''\rangle}} \simeq \frac{(2\mu^2\gamma)^2}{8(\mu\sqrt{2g})^2} = 2\mu^2 n_{c_0}\tag{2.36}$$

$$n_{c_{|+''\rangle}} = \frac{\gamma_{|+''\rangle}^2}{8g_{|+''\rangle}} \simeq \frac{(2\nu^2\gamma)^2}{8(\nu\sqrt{2g})^2} = 2\nu^2 n_{c_0}.\tag{2.37}$$

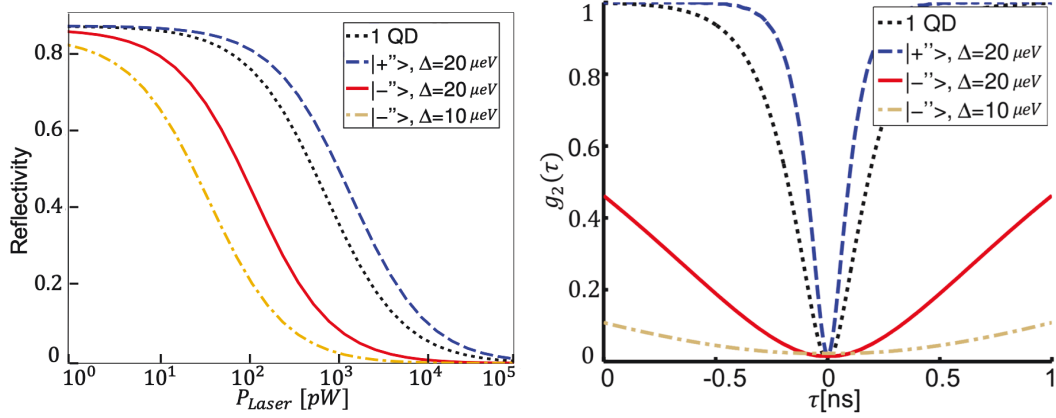
D'après l'équation (2.23),  $\mu^2 \ll 1$  et  $\nu^2 \sim 1$ , pour les valeurs usuelles de désaccord  $\Delta_{12} \lesssim \Omega_{12}$ . Ainsi  $n_{c_{|+''\rangle}} > n_{c_0} > n_{c_{|-''\rangle}}$  : l'état  $|+''\rangle$  sature moins vite et l'état  $|-''\rangle$  sature plus vite qu'une BQ unique. C'est pourquoi sur la deuxième ligne de la figure, le pic correspondant à l'état  $|+''\rangle$  est plus haut que celui d'une BQ unique et celui de  $|-''\rangle$  plus bas. De plus la valeur de  $\Delta_{12}$  joue un rôle crucial pour l'état  $|-'\rangle$  où le seuil de saturation peut être arbitrairement bas. Ainsi avec un désaccord plus petit, cf. colonne (e), l'état  $|-''\rangle$  sature encore plus vite, et on le voit déjà saturer pour  $P_{\text{laser}} = 1$  pW. La raison pour laquelle il est possible d'obtenir des seuils aussi bas provient de la réduction du taux d'émission spontanée dans le vide  $\gamma_{|-''\rangle}$  qui peut être aussi petite que l'on veut <sup>5</sup> pour un désaccord assez faible. C'est donc le fait que les BQs soient proches et interagissent avec le même continuum de modes du vide qui fait que la non-linéarité puisse être aussi importante. Ensuite, le désaccord permet de jouer sur le seuil. Le comportement non-linéaire est étudié plus en détail sur la figure 2.5a, où l'on a tracé la réflectivité de chaque état collectif en fonction de la puissance laser incidente. Pour cela la fréquence du laser incident, et celle du mode de cavité, sont centrées sur la fréquence de l'état considéré. On prend comme référence l'état d'une BQ seule en cavité tracé en noir. La réflectivité commence proche de 1 lorsque la BQ n'est pas saturée (pic de réflectivité des spectres 2.4), puis décroît jusqu'à arriver à zéro quand la BQ est blanchie et que le système se comporte finalement comme une cavité vide, et que tout la plus grande partie de la puissance laser est transmise. On peut voir que l'allure du comportement non-linéaire pour chaque état est similaire mais que le seuil à partir duquel l'état commence à saturer varie fortement selon les

4. Où on a négligé les termes en  $\gamma - \gamma_{12} \simeq 0$ .

5. Le taux d'émission minimum étant atteint pour  $\Delta_{12} = 0$ , et vaut dans ce cas  $\gamma_-$ .



## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement



(a) Réflectivité en fonction de la puissance laser incidente. (b) Fonction de corrélation en intensité  $g_2(\tau)$  en fonction du délai entre deux détections.  $P_{\text{laser}} = 10 \text{ pW}$ .

**Figure 2.5** – Réflectivité et fonction de corrélation en intensité pour les états collectifs. En noir pour 1BQ seule, en bleu pour l'état superradiant  $|+\rangle$  avec  $\Delta_{12} = 20 \mu\text{eV}$ , en rouge pour l'état sous-radiant  $|-\rangle$  avec le même désaccord, et en jaune pour le même état  $|-\rangle$  mais pour un désaccord plus petit  $\Delta_{12} = 10 \mu\text{eV}$ . Les paramètres utilisés sont  $\{g, \kappa, \gamma\} = \{20, 200, 0.6\} \mu\text{eV}$ . Les fréquences du laser et de la cavité sont accordées à chaque fois à l'état en considération.

différents cas. Ainsi l'état superradiant est plus robuste et ne commence à saturer qu'au double de puissance par rapport au cas à une BQ. Par contre l'état sous-radiant sature plus facilement et le comportement non-linéaire est observé pour des puissances incidentes un ordre de grandeur plus faible lorsque  $\Delta_{12} = 20 \mu\text{eV}$ . Et ce seuil est encore réduit d'un facteur 3 en passant à  $\Delta_{12} = 10 \mu\text{eV}$ .

On va à présent voir en quoi cette non-linéarité permet de modifier aussi la statistique de la lumière réfléchie.

### 2.5 Blocage de photon accordable

La non-linéarité géante décrite dans la section précédente est au cœur du phénomène de blocage de photon, dans lequel un photon unique conditionne la transmission ou la réflexion d'un second photon [Guendelman *et al.*, 2014; Volz *et al.*, 2012; Bennett *et al.*, 2016; Snijders *et al.*, 2016; De Santis *et al.*, 2017]. Ce phénomène, qui permet notamment de fabriquer des portes logiques de photons [Hacker *et al.*, 2016], est mis en évidence à travers des expériences de corrélations réalisées sur la partie réfléchie d'un laser incident sur le système. La statistique de ce faisceau incident cohérent est

modifié pour passer d'une statistique poissonnienne à une statistique sub-poissonnienne. Cette dernière est caractérisée par une anti-coalescence de photons. En effet la lumière réfléchie est une superposition cohérente du laser réfléchi et des photons émis par le TLS à travers la cavité. Étant donné que l'on considère ici une cavité symétrique, en absence de BQ la lumière est transmise en sa totalité et  $R_{\min} = 0$ . En présence du système à deux niveaux, la lumière réfléchie est issue entièrement de l'émission du TLS et présente donc un creux d'anticoalescence. La fonction de corrélation en intensité de la lumière réfléchie à zéro délai est donc nulle :  $g_2(\tau = 0) = 0$ . [Carmichael et Walls, 1976]. Cette fonction représente la probabilité de détecter un photon au temps  $t = \tau$  à condition d'avoir détecté un photon au temps  $t = 0$ . La valeur de cette fonction à l'origine traduit donc la probabilité que les photons arrivent, ou pas, par paquet. La largeur du creux de corrélation dépend du taux de re-excitation du système à deux niveaux après émission du premier photon. Ce taux de re-excitation est égal au taux d'émission Purcell  $\Gamma_0$ , et la largeur du creux de corrélation est donc proportionnelle<sup>6</sup> à  $1/\Gamma$  [Walls et Milburn, 2008, § 11.3]. Il est donc intéressant de comparer les fonctions de corrélation en intensité des différents états collectifs, pour tout d'abord confirmer leur comportement en tant que système à deux niveaux effectif, et ensuite pour comparer les temps d'anticorrélation obtenus. La fonction de corrélation en intensité normalisée s'écrit :

$$g_2(\tau) = \frac{\langle a_{\text{out}}^\dagger(0)a_{\text{out}}^\dagger(\tau)a_{\text{out}}(\tau)a_{\text{out}}(0) \rangle}{\langle a_{\text{out}}^\dagger a_{\text{out}} \rangle^2}, \quad (2.38)$$

avec  $a_{\text{out}}$  l'opérateur annihilation du champ réfléchi. Sur la figure 2.5b on trace cette fonction pour l'état superradiant  $|+\rangle$ , l'état sous-radiant  $|-\rangle$  et pour une QB seule prise en tant que référence. On a encore centré la fréquence du laser et de la cavité avec le mode en considération. Tout d'abord la figure montre bien que tous les états présentent une anticorrélation à l'origine, i.e.  $g_2(\tau) = 0$ , signifiant que la probabilité qu'il y ait plus d'un photon émis à un instant donné est nulle. L'anharmonicité de l'échelle d'énergie due au couplage direct permet bien d'obtenir des systèmes à deux niveaux effectifs. Ensuite on voit que la BQ seule (en noir), a une fonction de corrélation qui est moins étroite que celle du mode superradiant (en bleu) mais bien plus que celle des modes sous-radiants (rouge et jaune). Ceci provient des taux d'émission calculés au paragraphe précédent : l'état sous-radiant  $|-\rangle$  a un taux d'émission  $\Gamma_{|-\rangle}$  bien plus faible et l'état superradiant un taux  $\Gamma_{|+\rangle}$  presque deux fois supérieur au taux de la BQ seule  $\Gamma_0$ . Ainsi lorsque l'état sous-radiant émet un photon, son couplage

---

6. Ceci n'est vrai qu'à faible puissance. Pour un laser plus intense, la force de couplage avec le mode de cavité est modifiée dû au nombres de photons en cavité, il faut donc remplacer  $g$  par  $\sqrt{N}g$ , avec  $N$  le nombre de photons moyens dans la cavité.

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

plus faible avec le mode de cavité fait qu'il ait besoin d'un temps plus long pour être à nouveau excité et pouvoir ainsi re-émettre un deuxième photon. La probabilité de détecter ce deuxième photon va donc rester très faible pendant un temps  $1/\Gamma_{|- \gamma)}$ . Comme le paramètre d'intérêt ici est le temps de vie, et que celui-ci s'écrit comme l'inverse du taux d'émission, on va pouvoir obtenir du blocage de photon sur des durées arbitrairement longue. En effet on a vu que  $\Gamma_{|- \gamma)} \in [0, \Gamma_0]$ , donc  $1/\Gamma_0 \in [\Gamma_0, \infty]$ . L'exemple est donné comme précédemment avec les deux désaccords  $\Delta_{12} = 20 \mu\text{eV}$  et  $\Delta_{12} = 10 \mu\text{eV}$ , où le deuxième a un creux bien plus large que le premier. Ces échelles de temps élevées d'anticorrélation laissent prévoir une capacité pour le système d'agir en tant que mémoire quantique sur des durées surpassant largement la nanoseconde.

## 2.6 Résumé

Deux mécanismes physiques permettent de modifier l'interaction de photons avec des systèmes atomiques à deux niveaux. Tout d'abord la modification de l'environnement électromagnétique grâce à l'usage de cavités optiques. D'autre part, les effets collectifs en mettant en interaction plusieurs atomes. Dans ce chapitre nous avons réalisé une étude théorique d'un système qui met en commun ces deux mécanismes, à savoir les effets collectifs en cavité. Le système consiste en une cavité avec deux systèmes à deux niveaux fortement couplés entre eux et donc produisant un état superradiant et un état sous-radiant. Ces deux états sont en interaction avec la cavité. La différence de fréquence entre les deux atomes introduit un nouveau degré de liberté qui permet de contrôler électriquement le système par effet Stark différentiel. En particulier, l'état sous-radiant présente un comportement non-linéaire à l'échelle du photon unique qui varie sur des ordres de grandeurs pour de très faibles modifications du désaccord en fréquence. Cette propriété s'accompagne par la capacité à moduler sa bande passante de quelques picosecondes à plusieurs dizaines de nanosecondes, ce qui permettrait d'interagir avec des systèmes quantiques aux temps caractéristiques très différents pour permettre de construire un réseau quantique hybride. Dans le chapitre suivant nous allons mettre à profit la possibilité de modifier le désaccord en fréquence entre les deux BQs, de façon dynamique, pour pouvoir contrôler l'émission et l'absorption d'impulsions de photons uniques.

# Annexes

## 2.A Deux systèmes à deux niveaux en interaction

Dans la base collective  $\{|gg\rangle, |-\rangle, |+\rangle, |ee\rangle\}$  l'Hamiltonien d'interaction dipôle-dipôle entre deux TLS s'écrit :

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Omega_{12} & -\Delta & 0 \\ 0 & -\Delta & -\Omega_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \omega_1 + \omega_2 \end{pmatrix}. \quad (2.39)$$

Sa diagonalisation permet d'obtenir les états propres avec leur énergie correspondante

$$|gg\rangle, \quad E_{|gg\rangle} = 0 \quad (2.40)$$

$$|-\prime\rangle = \mu |+\rangle + \nu |-\rangle, \quad E_{|-\prime\rangle} = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2} - \sqrt{\Delta^2 + \Omega_{12}^2} \quad (2.41)$$

$$|+\prime\rangle = \nu |+\rangle - \mu |-\rangle, \quad E_{|+\prime\rangle} = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2} + \sqrt{\Delta^2 + \Omega_{12}^2} \quad (2.42)$$

$$|ee\rangle, \quad E_{|ee\rangle} = \omega_1 + \omega_2 \quad (2.43)$$

$$(2.44)$$

avec  $\mu$  et  $\nu$  explicités en (2.23).

## 2.B Couplage au mode de cavité et taux d'émission spontanée

L'interaction entre les BQs et le mode de cavité est décrit par le terme

$$i\sqrt{2}g \left( a^\dagger \frac{(\sigma_1 + \sigma_2)}{\sqrt{2}} - a \frac{(\sigma_1^+ + \sigma_2^+)}{\sqrt{2}} \right) \quad (2.45)$$

## 2 Effets collectifs en cavité : vers un dipôle modulable électriquement

de l'Hamiltonien de l'équation (2.1). Pour écrire le couplage au mode des états effectifs  $|+\rangle$  et  $|-\rangle$  on réécrit l'opérateur symétrique  $\frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{2}}$  en fonction de ces états :

$$\begin{aligned} \frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{2}} &= \nu \left( |+\rangle\langle ee| + |gg\rangle\langle +|\right) \\ &+ \mu \left( |gg\rangle\langle -|\right. \\ &\left. + |-\rangle\langle ee| \right) \end{aligned} \quad (2.46)$$

où  $|i\rangle\langle j|$  est l'opérateur qui transforme l'état  $j$  de la base collective en l'état  $i$ . On en déduit directement les forces de couplage avec le mode de cavité des états  $|-\rangle$  et  $|+\rangle$  :

$$g_{|-\rangle} = \mu\sqrt{2}g \quad (2.47)$$

$$g_{|+\rangle} = \nu\sqrt{2}g. \quad (2.48)$$

On procède de la même façon pour calculer les taux d'émission dans les modes à pertes. Pour deux BQs à 10 nm, l'émission spontanée dans ces modes est décrite par le Lindbladien

$$(\gamma + \gamma_{12})\mathcal{L}\left(\frac{\sigma_1 + \sigma_2}{\sqrt{2}}\right). \quad (2.49)$$

Les termes en  $\gamma - \gamma_{12} \simeq 0$  sont négligeables. Lorsqu'on injecte l'expression de l'opérateur symétrique (2.46) dans l'équation. (2.49) on obtient :

$$\begin{aligned} &(\gamma + \gamma_{12}) \left( \nu^2 \mathcal{L}(|+\rangle\langle ee| + |gg\rangle\langle +|) \right. \\ &+ \mu^2 \mathcal{L}(|-\rangle\langle ee| + |gg\rangle\langle -|) \\ &+ \mu\nu \left( |gg\rangle\langle -| + |-\rangle\langle ee| \right) \rho \left( |ee\rangle\langle +| + |+\rangle\langle gg| \right) \\ &+ \mu\nu \left( |gg\rangle\langle +| + |+\rangle\langle ee| \right) \rho \left( |ee\rangle\langle -| + |-\rangle\langle gg| \right) \\ &+ \frac{1}{2}\mu\nu \left( |+\rangle\langle -| - |-\rangle\langle +| \right) \rho \\ &\left. + \frac{1}{2}\mu\nu \rho \left( |+\rangle\langle -| - |-\rangle\langle +| \right) \right). \end{aligned}$$

Le premier terme correspond aux désexcitation suivant la branche symétrique  $|ee\rangle \rightarrow |+\rangle \rightarrow |gg\rangle$  avec un taux  $\nu^2(\gamma + \gamma_{12})$ , le deuxième suivant la branche antisymétrique  $|ee\rangle \rightarrow |-\rangle \rightarrow |gg\rangle$  avec un taux (négligeable)  $\mu^2(\gamma + \gamma_{12})$ , et les derniers termes sont des termes croisés qui couplent de façon incohérente les états collectifs effectifs avec un taux  $\mu\nu(\gamma + \gamma_{12})$  [Ficek et Tanaš, 2002].

# Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence

## Introduction

Les travaux discutés dans la partie précédente ont permis d'étudier le système de deux BQs couplées en cavité du point de vue récepteur et en état stationnaire. On a montré comment l'utilisation des modes collectifs, notamment le mode sous-radiant, permet d'accorder la bande-passante du système pour s'adapter à une excitation incidente, tout cela en exaltant son comportement non-linéaire. On va maintenant étudier ce système en tant que source de photons uniques. Nous allons montrer que ce type de source permet de contrôler :

- l'instant d'émission
- la largeur spectrale du photon émis
- son enveloppe temporelle.

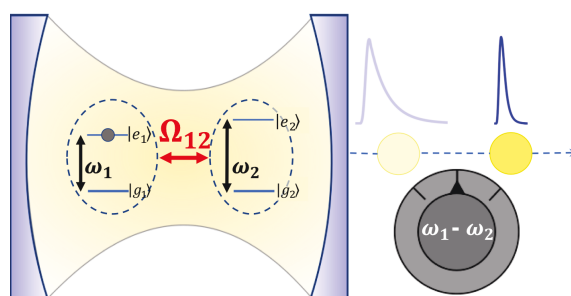
Le contrôle de l'instant d'émission sur des durées longues par rapport aux temps caractéristiques du système va lui permettre par ailleurs d'agir en tant que mémoire quantique pour stocker des photons uniques. Les sources de photons uniques sont l'élément de base pour la plupart des architectures d'information [Knill, Laflamme, et Milburn, 2001; Aspuru-Guzik et Walther, 2012] et de réseaux quantiques [O'Brien, Furusawa, et Vučković, 2009; Lodahl, Mahmoodian, et Stobbe, 2015]. Leur implémentation est basée sur la désexcitation de systèmes à niveaux d'énergie quantifiés tels que les atomes froids, les ions, les centres colorés, les molécules et les boîtes quantiques. La fraction de photons effectivement collectés après un processus d'émission détermine l'efficacité d'extraction de la source. Celle-ci se doit d'être proche de l'unité pour les applications de traitement et de transport de l'information quantique [Kok et al., 2007; Knill, Laflamme, et Milburn, 2001]. Plusieurs stratégies ont permis d'approcher cette valeur, que ce soit grâce à des antennes diélectriques [Lodahl, Mahmoodian, et Stobbe,

### 3 Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence

2015], ou en modifiant l'environnement électromagnétique entourant l'émetteur en utilisant des nanofils [Claudon *et al.*, 2010], des antennes plasmoniques [Esteban, Teperik, et Greffet, 2010; Belacel *et al.*, 2013] ou des cavités optiques [Gazzano *et al.*, 2013; Madsen *et al.*, 2014]. La première stratégie est basée sur la collection de tous les modes disponibles, la deuxième consiste à inhiber tous les modes sauf un bien orienté vers le système de collection et la dernière consiste à exalter par effet Purcell [1946] un seul mode facilement collectable. Cette dernière permet notamment d'accélérer l'émission de photons. Ceci se traduit par une réduction du temps de vie ce qui permet de minimiser les processus de décohérence et donc d'obtenir une meilleure indiscernabilité des photons émis successivement [Somaschi *et al.*, 2016; Aharonovich, Englund, et Toth, 2016; Wang *et al.*, 2017]. Les progrès de nanofabrication ont permis d'améliorer les caractéristiques des sources de photons uniques à l'état solide [Senellart, Solomon, et White, 2017]. Cependant les caractéristiques de la source sont généralement figées après fabrication laissant peu de marge d'accordabilité. Ceci pose des problèmes d'interconnexion avec d'autres systèmes atomiques, que ce soient d'autres sources avec le même émetteur mais avec des caractéristiques différentes dues à la fabrication, ou des systèmes d'émetteurs différents. Or il serait intéressant de pouvoir faire la jonction entre différents systèmes dans un même réseau quantique hybride pour ainsi profiter des avantages de chacun [Wallquist *et al.*, 2009]. D'où l'intérêt de pouvoir agir sur la source déjà fabriquée de façon rapide, et surtout, efficace. Certains groupes ont réussi à implémenter un contrôle actif des propriétés des sources de photons. Par exemple l'effet Purcell peut être accordé en jouant sur le désaccord entre l'émetteur et la cavité de façon électrique [Laucht *et al.*, 2009; Faraon *et al.*, 2010; Petruzzella *et al.*, 2015], mécanique [Kuklewicz *et al.*, 2012], ou par injection de porteurs libres [Thyrrstrup *et al.*, 2013]. On peut ainsi accorder la durée de vie et donc la bande-passante de l'émission. Par contre la réduction du facteur de Purcell  $F_P$  se fait au détriment de la brillance de la source  $B$ . Celle-ci est prise par convention comme étant le nombre de photons arrivant sur la première optique hors du système (à savoir une lentille ou un objectif). Elle s'écrit comme le produit  $B = (\beta\eta_{\text{coll}}p_{\text{atome}}\eta_{\text{EQ}})$  [Lodahl, Mahmoodian, et Stobbe, 2015], avec

$$\beta = \frac{F_P}{F_P + 1}, \quad (3.1)$$

la fraction de photons émis dans le mode de désiré,  $\eta_{\text{coll}}$  l'efficacité de collection du photon émis dans le mode désiré,  $p_{\text{atome}}$  la probabilité d'excitation de l'atome par pulse et  $\eta_{\text{EQ}}$  l'efficacité quantique de la source.



**Figure 3.1** – Schéma du système. Deux BQs schématisées comme deux TLS, en interaction dipôle-dipôle, résonantes, et couplées faiblement avec le mode d'une cavité. Le désaccord en fréquence entre les deux BQs,  $\Delta_{12} = \frac{\omega_1 - \omega_2}{2}$ , est modifié par effet Stark différentiel, et permet de contrôler l'émission du photon unique.

Ainsi, en diminuant l'exaltation de l'effet Purcell par application d'un désaccord avec la cavité, on ne modifie que l'exaltation mais pas l'émission dans des modes autres que celui de la cavité. Ainsi le facteur  $\beta$  diminue et donc la brillance se voit dégradée. Le contrôle dynamique de l'émission a aussi été obtenu avec des architectures plus élaborées utilisant deux cavités couplées [Su *et al.*, 2008; Jin *et al.*, 2014], ou des systèmes à trois niveaux [Matsko, 2009; Keller *et al.*, 2004; Kuhn, Hennrich, et Rempe, 2002]. Outre le contrôle du temps de vie et de la bande passante, il est aussi possible de contrôler la phase et l'amplitude de l'impulsion (appelé aussi mise en forme d'impulsion) [Thyrrstrup *et al.*, 2013; Keller *et al.*, 2004; Tufarelli *et al.*, 2014]. Ceci permet par exemple d'adapter la forme de l'impulsion pour améliorer l'absorption du photon, ou d'encoder de l'information dans le domaine temporel [Brendel *et al.*, 1999; Su *et al.*, 2009].

Dans ce chapitre nous allons montrer que le système de deux TLS en cavité permet de modifier à la fois le temps et la durée d'émission sur des ordres de grandeur, mais aussi la forme temporelle de l'impulsion, tout en maintenant la brillance constante. Une application majeure serait le stockage de photons uniques incidents à large bande spectrale.

### 3.1 Le système

Le système est essentiellement le même qu'au chapitre précédent avec deux BQs très proches couplées directement par dipôle-dipôle, placées au centre d'une cavité en régime Purcell comme schématisé sur la Fig. 3.1. Cependant, dans ce chapitre nous allons augmenter d'un cran l'utilisation du désaccord en fréquence entre les



### 3 Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence

deux BQs, en mettant à profit notamment les techniques d'application d'un champ électrique pendant un intervalle de temps inférieur à la nanoseconde. En effet il est possible en dopant la structure de modifier la fréquence de chacune des boîtes par effet Stark confiné [Unold *et al.*, 2004; Bennett *et al.*, 2010; Sonnenberg *et al.*, 2014]. On s'intéresse notamment à la possibilité de modifier le désaccord  $\Delta_{12}$  dans le temps, avec des durées caractéristiques de l'ordre, ou inférieures, aux processus d'émission du système. Ainsi il serait possible d'agir sur l'émission pendant que celle-ci a lieu. On s'intéresse dans ce chapitre principalement à l'état sous-radiant, les échelles de temps d'émission dépendent donc de son taux d'émission  $\Gamma_{|-''\rangle}$  donné par l'équation (2.31). Ceci correspond à des échelles de temps comprises entre la dizaine de picosecondes et la dizaine de nanosecondes. L'état de l'art permet un contrôle électrique de BQs avec des impulsions de l'ordre de 100 ps et des front montants en dessous de 50 ps [Widhalm *et al.*, 2018]. Il est donc envisageable de contrôler le désaccord des deux BQs sur ces échelles de temps. On peut ainsi contrôler le comportement du mode sous-radiant et donc du système dans le temps. L'Hamiltonien du système est réécrit de façon à montrer cette dépendance dans le domaine temporel. Il reprend les mêmes éléments qu'au chapitre précédent (2.15). Par contre, on s'intéresse principalement dans ce chapitre au processus de fluorescence en partant du système excité.<sup>1</sup> Dans le référentiel tournant à la fréquence moyenne des deux BQs,  $\omega_0 = \frac{\omega_1 + \omega_2}{2}$ , avec  $\hbar = 1$  on obtient :

$$H(t) = \Omega_{12} (\sigma_s^\dagger \sigma_s - \sigma_a^\dagger \sigma_a) + (\omega_c - \omega_0) a^\dagger a \\ + \Delta_{12}(t) (\sigma_s^\dagger \sigma_a + \sigma_s \sigma_a^\dagger) + i\sqrt{2}g (a^\dagger \sigma_s - a \sigma_s^\dagger) , \quad (3.2)$$

où  $\Omega_{12}$  et  $g$  correspondent à la force de couplage dipôle-dipôle et BQ-cavité respectivement,  $\sigma_a$ ,  $\sigma_s$  et  $a$  sont dans l'ordre l'opérateur symétrique, antisymétrique et annihilation. La modification principale par rapport au chapitre précédent est l'ajout d'une dépendance temporelle explicite du désaccord  $\Delta_{12}(t)$ . Comme précédemment, c'est lui qui modifie les états propres du système en rajoutant en particulier une composante symétrique à l'état sous-radiant, que l'on appellera état sous-radiant effectif  $|-\rangle_{\text{eff}}$  et qui correspond à l'état  $|-\rangle$  du chapitre précédent. Ainsi :

$$|-\rangle_{\text{eff}} \simeq \mu |+\rangle + \nu |-\rangle , \quad (3.3)$$

avec  $\mu$ ,  $\nu$  donné en (2.23) et  $|\mu| \ll 1$  tant que  $\Delta_{12} \lesssim \Omega_{12}$ . L'émission spontanée des BQs dans les modes autres que celui de la cavité reste la même que précédemment et

---

1. Le processus d'excitation sera étudiée dans le paragraphe 3.3 sur la mémoire quantique.

on obtient l'équation maîtresse sous la même forme (2.14) :

$$\dot{\rho} = i[\rho, H(t)] + \kappa \mathcal{L}(a) + \gamma_+ \mathcal{L}(\sigma_s) + \gamma_- \mathcal{L}(\sigma_a),$$

où  $\gamma_{\pm} = \gamma \pm \gamma_{12}$  désignent les taux d'émission dans les modes autres que celui de la cavité. Ces taux sont modifiés par interaction directe entre les BQs. A partir de l'équation maîtresse il est possible de calculer les évolutions temporelles des valeurs moyennes des opérateurs champ  $\hat{a}$  et dipôles  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$ . Les équations exactes sont :

$$\langle \dot{a} \rangle = \left( -\frac{\kappa}{2} - i(\omega_c - \omega_0) \right) \langle a \rangle + \sqrt{2}g \frac{\langle \sigma_1 \rangle + \langle \sigma_2 \rangle}{\sqrt{2}}, \quad (3.4)$$

$$\langle \dot{\sigma}_i \rangle = \left( -\frac{\gamma}{2} - i(\omega_i - \omega_0) \right) \langle \sigma_i \rangle + g \langle a \sigma_i^z \rangle + i\Omega_{12} \langle \sigma_j \sigma_i^z \rangle \quad (3.5)$$

avec  $\sigma_i$  correspondant au dipôle de la  $i$ -ème boîte,  $j \neq i$  et  $\sigma_j^z = \sigma_j^+ \sigma_j - \sigma_j \sigma_j^+$ . La présence de l'opérateur  $\sigma^z$  est inhérente aux systèmes à deux niveaux et traduit leur caractère saturable [Auffèves et al., 2008]. Lorsque l'on regarde l'émission spontanée du système contenant initialement une excitation dans le système, il est possible d'utiliser la base restreinte

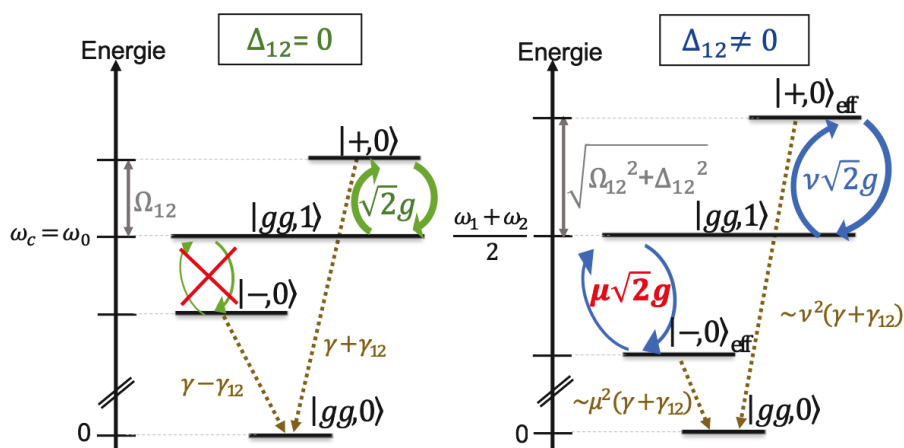
$$\{|g, g, 0\rangle, |e, g, 0\rangle, |g, e, 0\rangle, |g, g, 1\rangle\}. \quad (3.6)$$

L'opérateur  $\sigma_z$  se simplifie alors naturellement et on obtient les équations exactes :  $\langle a \sigma_i^z \rangle = -\langle a \rangle$  et  $\langle \sigma_j \sigma_i^z \rangle = -\langle \sigma_j \rangle$ . Ce sont les mêmes équations qu'on retrouverait en se plaçant dans l'approximation dite semi-classique qui permet de factoriser les valeurs moyennes des opérateurs, avec une très faible puissance de pompe. Ainsi  $\langle \sigma_i^z \rangle \sim -1$  et l'on obtient le même système d'équations qu'au chapitre précédent (2.17) :

$$i \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} \langle \sigma_a \rangle \\ \langle \sigma_s \rangle \\ \langle a \rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\Omega_{12} - i\frac{\gamma_-}{2} & \Delta_{12}(t) & 0 \\ \Delta_{12}(t) & \Omega_{12} - i\frac{\gamma_+}{2} & -i\sqrt{2}g \\ 0 & i\sqrt{2}g & \omega_c - \omega_0 - i\frac{\kappa}{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \langle \sigma_a \rangle \\ \langle \sigma_s \rangle \\ \langle a \rangle \end{pmatrix}. \quad (3.7)$$

Ces équations permettront de calculer le flux et le spectre de la lumière émise par le système.

### 3 Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence



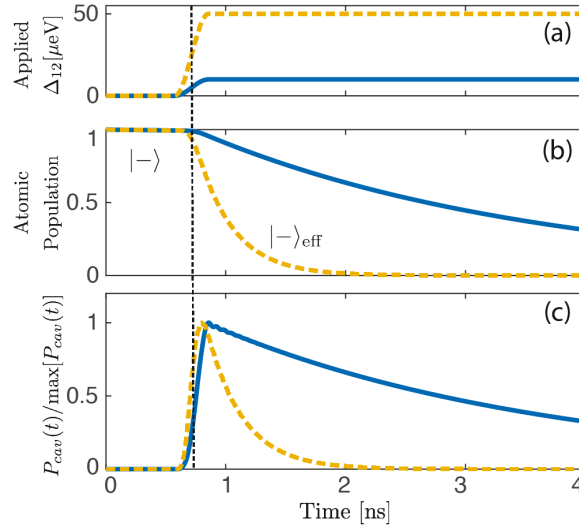
**Figure 3.2** – Diagramme d'énergie des états propres contenant au plus une excitation. Les premiers termes des kets indiquent les états atomiques, le dernier terme indique le nombre de photons dans la cavité. Les double flèches indiquent des couplages cohérents tandis que les flèches en pointillés correspondent aux taux d'émission spontanée dans les modes autres que celui de la cavité. Diagramme de gauche : à résonance  $\Delta_{12} = \frac{\omega_1 - \omega_2}{2} = 0$ , l'état sous-radiant  $|-\rangle = \frac{|e,g\rangle - |g,e\rangle}{\sqrt{2}}$  est sombre et découplé de la cavité. A droite : lorsqu'un léger désaccord est introduit  $\Delta_{12} \neq 0$  le nouvel état sous-radiant  $|-\rangle_{\text{eff}}$  n'est plus totalement antisymétrique et commence à se coupler au mode de cavité avec un couplage accordable  $\mu\sqrt{2}g$ . Les écarts d'énergie sont indiqués sur l'axe vertical de chaque diagramme.

## 3.2 Mise en forme spectrale et temporelle

On considère l'état sous-radiant initialement excité<sup>2</sup> et on étudie les photons qui sont émis par un des côtés de la cavité. L'autre miroir est pris comme étant parfaitement réfléchissant pour ainsi pouvoir collecter toute la lumière (sauf celle partant dans les autres modes que ceux de la cavité). En contrôlant le désaccord en fréquence entre les deux BQs on va pouvoir contrôler l'émission dans le mode de cavité. Le diagramme d'énergie des états propres contenant au plus une excitation est représenté sur la figure 3.2. Il présente les deux cas de figure entre lesquels on va basculer pour pouvoir contrôler l'instant d'émission, à savoir la présence ou non de désaccord entre les deux BQs. On commence donc à  $t = 0$  avec  $\Delta_{12} = 0$ , présenté sur le diagramme de gauche. L'état propre sous-radiant est l'état antisymétrique  $|-\rangle = \frac{|e,g\rangle - |g,e\rangle}{\sqrt{2}}$ . Il n'est pas couplé au mode de cavité. Ceci est uniquement dû à des arguments de symétrie,

2. On ne se préoccupe pour l'instant pas de la partie excitation de cet état, celle-ci sera adressée au paragraphe suivant.

### 3.2 Mise en forme spectrale et temporelle



**Figure 3.3** – (a) Désaccord appliqué  $\Delta_{12}(t)$ , (b) population totale des deux BQs ( $\langle \sigma_1^+ \sigma_1 \rangle + \langle \sigma_2^+ \sigma_2 \rangle$ ) et (c) puissance émise par la cavité normalisée, en fonction du temps. Deux valeurs de désaccord maximal sont considérées : en bleu  $\Delta_{12} = 10 \mu\text{eV}$  et en jaune  $\Delta_{12} = 50 \mu\text{eV}$ . La ligne verticale indique l’instant d’application d’un désaccord qui fait passer l’état sombre  $|-\rangle$  à l’état gris  $|-\rangle_{\text{eff}}$ . La fréquence de la cavité est fixé sur sur la fréquence de l’état gris final dans chaque cas :  $\omega_c = \omega_{|-\rangle_{\text{eff}}} = \omega_0 - \sqrt{\Delta_{12}^2 + \Omega_{12}^2}$ .

et pour cela il faut que les deux BQs soient placées de part et d’autre du ventre de cavité, à deux endroits où le champ du mode est égal. Pour le mode fondamental d’une cavité Fabry-Pérot le profil du mode varie peu à proximité du ventre du mode, sur des distances de l’ordre d’une fraction de  $\lambda$ . Il suffira donc que les deux BQs soient à quelques dizaines de nanomètres de distance. La désexcitation de l’état sous-radiant dans les modes autres que ceux de la cavité n’est pas rigoureusement nulle, puisque les BQs ne sont pas couplées de façon symétrique à tous ces modes, mais elle est réduite et le taux d’émission est égal à  $\gamma_- = \gamma - \gamma_{12}$ . L’expression de  $\gamma_{12}$  est donné en (2.9) en fonction de la distance séparant les deux BQs. On considère toujours deux BQ séparées de 10 nm permettant de négliger les effets tunnel et de rester dans l’approximation dipolaire. A cette distance  $\gamma_{12} = 0,99\gamma$  et on obtient un temps de vie  $1/\gamma_- = 85/\gamma = 93 \text{ ns}$ . C’est au moins deux ordres de grandeurs plus long que les sources de photons de BQs en régime Purcell à l’état solide [De Santis et al., 2017]. Pendant tout ce temps l’excitation reste dans l’état  $|-\rangle$ . Pour émettre un photon il faut passer au cas du diagramme de droite sur la figure, en introduisant un désaccord  $\Delta_{12} \neq 0$ . Ce désaccord va permettre de passer de l’état  $|-\rangle$  au nouvel état  $|-\rangle_{\text{eff}}$  dont l’expression est donnée à l’équation (3.3).

La figure 3.3 présente cette émission contrôlée dans le temps. Sur cette figure sont

### 3 Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence

représentées en parallèle (a) les valeurs du désaccord, (b) la population atomique totale et (c) la puissance normalisée émise par le système. On part à  $t = 0$  de l'état  $|-\rangle$  avec  $\Delta_{12} = 0$ . Tant que le désaccord  $\Delta_{12}$  n'est pas appliqué, cet état n'est pas couplé à la cavité et sa population décroît très lentement avec un taux  $\gamma_-$  très faible, non perceptible à l'échelle de la figure. La cavité n'est pas peuplée, on ne détecte aucune intensité émise. Quand l'émission du photon unique est désirée, il suffit d'appliquer un champ électrique au système pour désaccorder les deux BQs entre elles par effet Stark différentiel et ainsi induire un couplage effectif de l'état sous-radiant avec la cavité. En effet le désaccord va introduire une composante symétrique non nulle dans le nouvel état propre  $|-\rangle_{\text{eff}}$ , selon l'équation (3.3), qui va se coupler avec la cavité et exalter l'émission spontanée par effet Purcell. Dans la figure, ce moment est identifié par la barre verticale en pointillés, et il a lieu au bout de 0,7 ns. L'application du désaccord pour réaliser le passage  $|-\rangle \rightarrow |-\rangle_{\text{eff}}$  doit être fait de façon adiabatique. Autrement les BQs se désynchronisent et on obtient une proportion non négligeable de l'excitation transférée à l'état  $|+\rangle_{\text{eff}}$ , qui se désexcite rapidement dans le mode de cavité sans possibilité de contrôle. Dans le cas adiabatique, on maintient la relation de phase désirée entre les BQs et on obtient donc uniquement l'état  $|-\rangle_{\text{eff}}$ . En pratique il faut que la modification de  $\Delta_{12}$  soit lente par rapport au terme d'interaction directe :

$$\dot{\Delta}_{12} \ll \Omega_{12}^2. \quad (3.8)$$

Pour une séparation de 10 nm, on a  $\Omega_{12} = 31 \mu\text{eV}$ , le critère de passage adiabatique est donc  $\dot{\Delta}_{12} \ll 1,5 \mu\text{eV}$ . On est donc limité à des désaccords de quelques dizaines de  $\mu\text{eV}$  sur des durées de l'ordre de 100 ps pour rester dans l'état  $|-\rangle_{\text{eff}}$ .

Cet état se couple au mode de cavité grâce à sa (faible) composante symétrique. Le couplage obtenu est (2.18) :

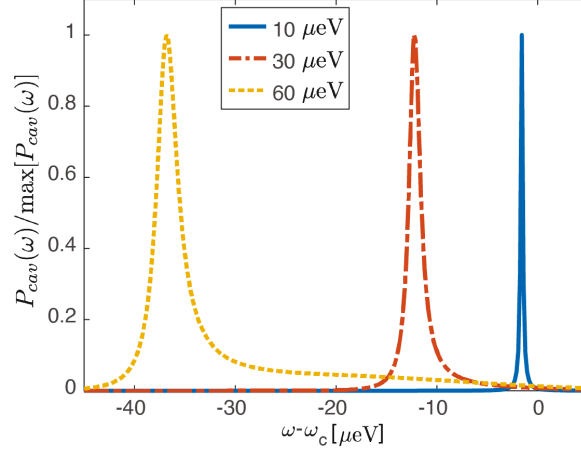
$$g_{|-\rangle_{\text{eff}}} = \mu\sqrt{2}g, \quad (3.9)$$

où  $\mu$  est donnée par l'équation (2.23), et qui va dépendre de la valeur maximale du désaccord choisi. En fonction de cette valeur, on va donc pouvoir contrôler le taux de désexcitation. En effet, une fois le désaccord appliqué, l'état propre  $|-\rangle_{\text{eff}}$  contenant l'excitation va émettre à travers la cavité avec un taux Purcell donné en (2.31) :

$$\Gamma_{|-\rangle_{\text{eff}}} = \frac{\mu^2 8g^2}{\kappa}. \quad (3.10)$$

Ce taux dépend de  $\mu$  et donc de  $\Delta_{12}$  selon l'équation (2.23). Dans la figure, la ligne bleue correspond à un désaccord final  $\Delta_{12_{\text{max}}} = 10 \mu\text{eV}$ , l'émission dans la cavité est

### 3.2 Mise en forme spectrale et temporelle



**Figure 3.4** – Spectres normalisés de la fluorescence des photons émis par l'état sous-radiant  $|-\rangle_{\text{eff}}$ , à travers le mode de la cavité, pour trois valeurs finales de désaccord  $\Delta_{12}$ . Les spectres sont centrés par rapport à la fréquence du mode de la cavité  $\omega_c$ .

plus lente que le cas représenté en jaune où  $\Delta_{12_{\text{max}}} = 50 \mu\text{eV}$ . Ainsi non seulement l'instant d'émission est contrôlé mais le temps de vie aussi.

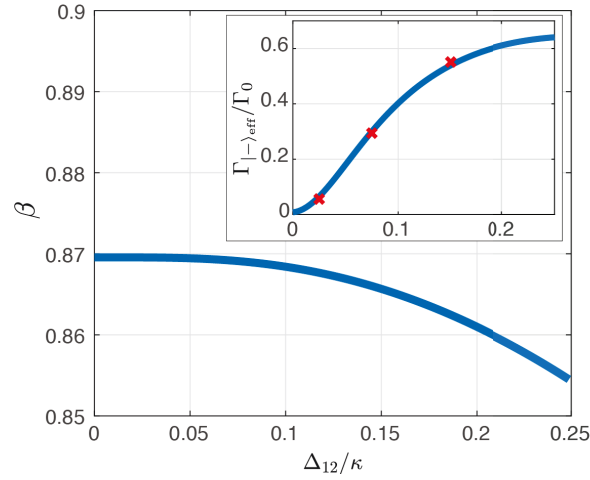
Ce temps de vie contrôlable peut aussi être vu comme un contrôle de la largeur spectrale du photon émis. Pour vérifier cela il suffit de calculer le spectre normalisé du photon émis en utilisant le théorème de Wiener-Khinchin à partir de la fonction de corrélation du champ  $\langle a^\dagger(t')a(t) \rangle$  :

$$S(\omega) = \frac{\text{Re} \int_{-\infty}^{\infty} dt \int_{-\infty}^{\infty} dt' \langle a^\dagger(t')a(t) \rangle e^{-i(\omega-\omega_c)(t'-t)}}{2\pi \int_{-\infty}^{\infty} dt \langle a^\dagger(t)a(t) \rangle}. \quad (3.11)$$

La fréquence de référence est celle de la cavité qui est prise centrée sur l'état sous-radiant sans désaccord (sombre) :  $\omega_c = \omega_{|-\rangle} = \omega_0 - \Omega_{12}$ . Les spectres des photons émis sont tracés sur la figure 3.4, pour trois valeurs de désaccords maximaux. Comme prévu, plus le désaccord maximal (indiqué dans la légende) est grand, plus l'état est large en fréquence. Ainsi lorsque  $\Delta_{12_{\text{max}}}$  passe de  $10 \mu\text{eV}$  à  $30 \mu\text{eV}$  puis à  $60 \mu\text{eV}$  la largeur spectrale est augmentée.

Il est important de noter que la fréquence de l'état final obtenu  $\omega_{|-\rangle_{\text{eff}}} = \omega_0 - \sqrt{\Delta_{12}^2 + \Omega_{12}^2}$  dépend du désaccord appliqué  $\Delta_{12}$  (cf. annexe 2.A). Cette fréquence de l'état  $|-\rangle_{\text{eff}}$  va donc varier en fonction de la largeur spectrale que l'on voudra obtenir. C'est pourquoi sur la figure plus on désaccorde les deux BQs, plus l'état est décalé vers les fréquences plus faibles. Cette propriété a un impact sur la largeur finale d'émission obtenue. En effet cette largeur fréquentielle est essentiellement égale au taux d'émission de l'état sous-radiant effectif  $|-\rangle_{\text{eff}}$  exalté par effet Purcell. Il faut donc

### 3 Source et mémoire de photons uniques, modulable en temps et en fréquence



**Figure 3.5** – Fraction  $\beta$  d'émission dans le mode de cavité en fonction du désaccord maximal entre les deux BQs  $\Delta_{12}$ . La résonance avec le mode de cavité est donné pour  $\Delta_{12} = 0$ . L'encadré montre le taux d'émission de l'état sous-radiant effectif  $\Gamma_{|->}_{\text{eff}}$  normalisé par l'émission Purcell d'une seul BQ à résonance avec la cavité  $\Gamma_0$ .

aussi faire attention à la fréquence de la cavité par rapport à la fréquence finale de l'état sous-radiant. Pour simuler une situation réelle, on a fixé la fréquence de la cavité à l'état antisymétrique en absence de désaccord entre les BQs  $\omega_c = \omega_{|->} = \omega_0 - \Omega_{12}$  pour les trois exemples. Le taux d'émission par effet Purcell de l'équation (3.10) doit être modifié en conséquence et on obtient [Andreani et al., 1999] :

$$\Gamma_{|->}_{\text{eff}} = \frac{4g_{|->}^2}{\kappa} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_c}{\kappa}\right)^2}, \quad (3.12)$$

où  $\Delta_c = \omega_c - \omega_{|->}_{\text{eff}}$ . Le taux d'émission correspond au taux à résonance de l'équation (3.10) pondéré par une lorentzienne qui dépend de l'écart fréquentiel entre l'état sous-radiant effectif et le mode de cavité en unités de largeur du mode de cavité. La variation de ce taux d'émission spontanée exaltée est tracé sur l'encadré de la figure 3.5 en fonction de  $\Delta_{12}$  lorsque la fréquence de la cavité est fixée sur celle de l'état antisymétrique  $|->$  (i.e. pour l'état sous-radiant lorsque  $\Delta_{12} = 0$ ). On voit qu'il est possible de balayer toute la gamme de largeur allant de 0 à 65% de l'émission d'une BQ seule à résonance avec la cavité  $\Gamma_0$ , avant que le désaccord avec le mode de cavité ne prenne le dessus et détériore l'effet Purcell. La valeur du taux maximal atteignable est donc proche de celle des systèmes de BQs à l'état solide et toutes les valeurs en deçà peuvent être obtenues. De plus il est possible de choisir la fréquence du mode de cavité de façon plus judicieuse en fonction de l'application recherchée, par

### 3.2 Mise en forme spectrale et temporelle

exemple de prendre une cavité centrée plus vers le rouge pour avoir une exaltation maximale atteignable plus forte. Il est aussi envisageable de considérer une contrainte supplémentaire qui ne jouerait que sur la fréquence de la cavité et que l'on pourrait centrer en fonction des cas.

Une propriété unique et tout à fait intéressante de ce système est de maintenir une efficacité de collection quasi-identique quelle que soit la largeur choisie. En effet, comme indiqué sur l'équation (3.1), la brillance de la source pour des systèmes à cavité dépend directement du facteur de Purcell. Celui-ci s'écrit comme le rapport entre le taux d'émission dans le mode de cavité sur le taux d'émission dans tous les autres modes du continuum. Pour une BQ seule en résonance avec la cavité il vaut :

$$F_P = \frac{\Gamma_0}{\gamma}. \quad (3.13)$$

La proportion de photons émis dans la cavité par rapport à l'émission totale pour une BQ unique s'écrit donc :

$$\beta = \frac{\Gamma_0}{\Gamma_0 + \gamma} = \frac{F_P}{F_P + 1}. \quad (3.14)$$

Cette équation peut être transposée pour l'émission de l'état sous-radiant effectif  $|- \rangle_{\text{eff}}$ . Il faut pour cela utiliser les taux d'émission de cet état dans le mode de cavité et dans tous les autres modes. Le premier est écrit en équation (3.12). Le deuxième dépend aussi du désaccord en fréquence entre les deux BQs et il est donné par l'équation (2.35) :

$$\gamma_{|- \rangle_{\text{eff}}} = \mu^2(\gamma + \gamma_{12}) \simeq 2\mu^2\gamma. \quad (3.15)$$

Le facteur de Purcell pour l'état  $|- \rangle_{\text{eff}}$  vaut donc :

$$F_{P|- \rangle_{\text{eff}}} = \frac{4g_{|- \rangle_{\text{eff}}}^2}{\kappa\gamma_{|- \rangle_{\text{eff}}}} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_c}{\kappa}\right)^2} = \frac{4g^2}{\kappa\gamma} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta_c}{\kappa}\right)^2}. \quad (3.16)$$

On obtient donc le même facteur de Purcell que pour une BQ unique  $F_P = \frac{4g^2}{\kappa\gamma}$  pondéré par la même lorentzienne de l'équation (3.12) provenant du décalage en fréquence avec la cavité. La fraction de photons émis dans le mode de cavité s'écrit donc pour cet état :

$$\beta = \frac{\Gamma_{|- \rangle_{\text{eff}}}}{\Gamma_{|- \rangle_{\text{eff}}} + \gamma_{|- \rangle_{\text{eff}}}} = \frac{F_P}{F_P + 1 + \left(\frac{2\Delta_c}{\kappa}\right)^2}. \quad (3.17)$$

Il est tracé sur la figure 3.5. Le facteur  $\beta$  varie uniquement de quelques pourcents sur une large gamme de désaccords des deux BQs permettant d'obtenir des largeurs

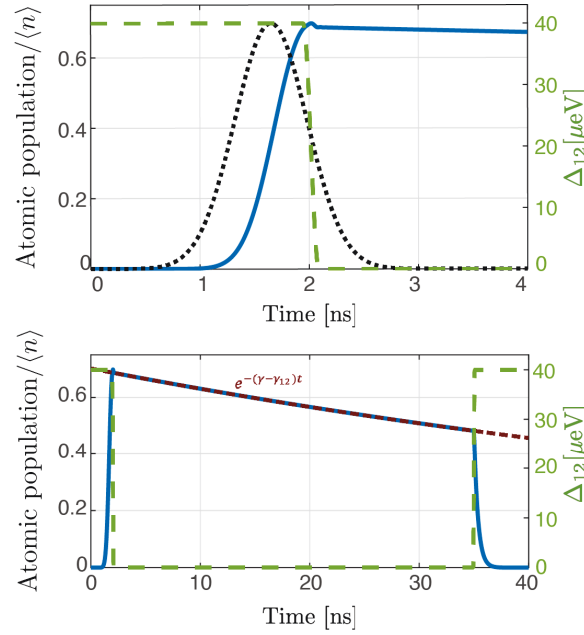


spectrales (en encadré) très différentes. On a donc obtenu une source de photons à bande passante réglable avec un facteur  $\beta$  quasi-constant contrairement aux stratégies habituelles qui consistent à jouer sur le facteur de Purcell pour modifier la largeur d'émission [Laucht *et al.*, 2009; Faraon *et al.*, 2010; Petruzzella *et al.*, 2015; Kuklewicz *et al.*, 2012] en diminuant par la même occasion le facteur  $\beta$ .

En résumé, en partant de l'état sous-radiant, il est possible d'émettre des photons uniques à des instants choisis avec des temps de vie et donc des largeurs accordables, tout en gardant une brillance élevée. L'instant d'émission contrôlé est basé sur le fait que le système arrive à stocker un photon dans un état excité pendant des temps longs par rapport aux processus d'émission habituels. Cette propriété permet au système d'agir en tant que mémoire quantique et sera étudiée plus en détail dans le paragraphe suivant.

## 3.3 Mémoire quantique

Pour émettre de façon contrôlée des photons uniques il faut pouvoir au préalable avoir excité l'état sous-radiant  $|-\rangle$ . Cette étape est présentée dans ce qui suit. On démontre que le système se comporte comme une mémoire quantique de photons uniques à large bande. Le processus d'excitation peut être simplement vu comme l'inverse du processus d'émission. L'état initial est l'état fondamental  $|g, g, 0\rangle$  avec des BQs légèrement désaccordées  $\Delta_{12} \neq 0$ . L'état propre est l'état sous-radiant effectif  $|-\rangle_{\text{eff}}$ , état gris qui est couplé au mode de cavité. Il est donc possible de l'exciter en pompant la cavité avec une impulsion incidente. Le pompage est pris en compte en rajoutant un terme à l'Hamiltonien de la forme  $H_P(t) = -i\mathcal{E}_p(t)(a^\dagger - a)$ , où  $\mathcal{E}_p$  est l'amplitude du laser couplé au mode de cavité. Cette expression simple n'est valable que pour une impulsion incidente cohérente. Pour modéliser simplement l'excitation par un photon unique en gardant cet Hamiltonien, on utilise une impulsion cohérente de très faible intensité, i.e. avec un nombre moyen de photons  $\langle n \rangle \ll 1$  [Kim *et al.*, 2013; Giannelli, Schmit, et Morigi, 2018]. Dans ce cas, la statistique poissonnienne de l'état cohérent est correctement décrite par son développement  $|\alpha\rangle = \left(1 - \frac{|\alpha|^2}{2}\right) |0\rangle + \alpha |1\rangle + \frac{\alpha^2}{2} |2\rangle + \mathcal{O}(|\alpha|^3)$ , avec  $|\alpha|^2 = \langle n \rangle$ . La probabilité d'avoir une composante de deux photons ou plus est de l'ordre de  $\langle n \rangle / 2$ . On prend  $\langle n \rangle = 0,01$  de façon à pouvoir la négliger et considérer que l'impulsion ne contient qu'un mélange de  $|0\rangle$  et  $|1\rangle$ . Ce dernier est le seul à pouvoir exciter la cavité et donc l'atome. En normalisant la population atomique par la probabilité d'avoir un photon dans l'impulsion  $|\alpha|^2$ , on obtient la même réponse que s'il s'agissait d'une impulsion de



**Figure 3.6** – En haut : Stockage d’un photon unique incident simulé par un état cohérent très faible avec un nombre moyen de photons par une impulsion  $\langle n \rangle = 0,01$ . La population atomique (en bleu) est normalisée par  $\langle n \rangle$ . L’impulsion incidente (en noir) est résonante avec l’état sous-radiant effectif  $|-\rangle_{\text{eff}}$ . Pour stocker l’excitation, les deux BQs sont ramenées à résonance ( $\Delta_{12} \rightarrow 0$  en vert) en synchronisation avec la pompe. La fréquence de la cavité est à nouveau fixée à  $\omega_c = \omega_0 - \Omega_{12}$ . En bas : même procédure pour une échelle de temps de 40 ns avec en plus une restauration du photon à  $t = 35$  ns. Le temps de stockage dépend du temps de vie de l’état sous-radiant  $|-\rangle$  égal à  $1/\gamma_-$ .

photon unique. La figure 3.6 montre l’évolution de la population atomique excitée par une impulsion cohérente faible,  $\langle n \rangle = 0,01$ , normalisée par le nombre de photons dans cette impulsion. La largeur de l’impulsion est optimisée pour obtenir la meilleure excitation possible qui correspond ici à FWHM = 550 ps<sup>3</sup>. La fréquence de pompe est fixée à résonance avec l’état sous-radiant effectif :

$$\omega_p = \omega_{|-\rangle_{\text{eff}}} = \omega_0 - \sqrt{\Delta_{12}^2 + \Omega_{12}^2}. \quad (3.18)$$

Dans cet exemple le désaccord initial est  $\Delta_{12}(0) = 40 \mu\text{eV}$ . Les BQs sont ensuite ramenées à résonance  $\Delta_{12}(t) \rightarrow 0$  pendant l’excitation pour ainsi transformer l’état  $|-\rangle_{\text{eff}}$  en l’état sombre  $|-\rangle$ , dans lequel le photon sera stocké. L’excitation restera dans cet état jusqu’à ce qu’un nouveau désaccord soit appliqué permettant de restaurer

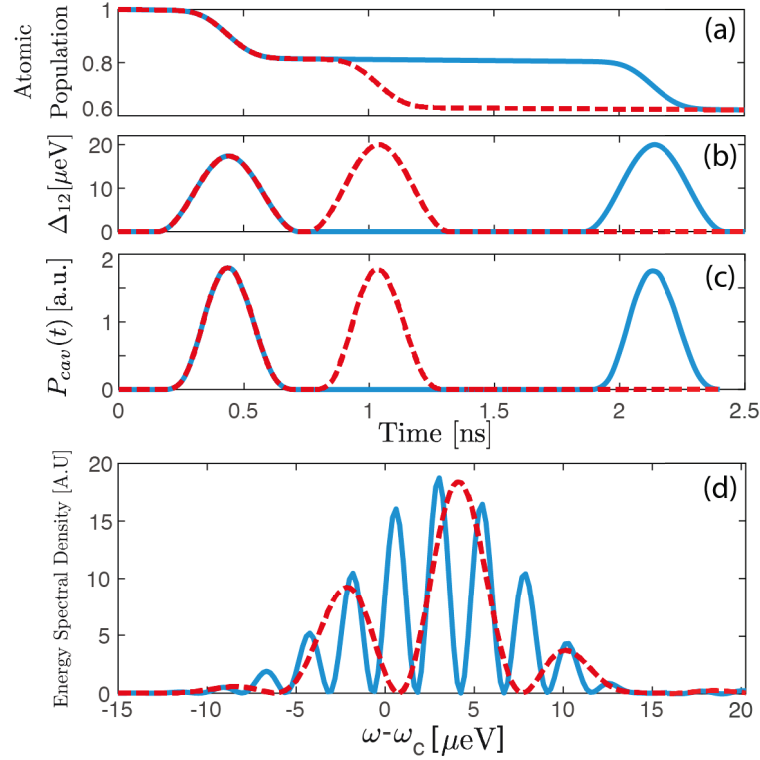
3. Le meilleur résultat est obtenu pour une impulsion de largeur temporelle 1,5 fois plus grande que la durée de vie de l’état ciblé [Stobińska, Alber, et Leuchs, 2009]

le photon initial. Comme mentionné précédemment, le temps de stockage dépend du temps de vie de l'état sombre  $|-\rangle$ , qui ne peut se désexciter que faiblement dans les modes autres que celui de la cavité avec un taux  $\gamma_- = \gamma - \gamma_{12}$  qui ne dépend que de la distance séparant les deux BQs. Pour  $d = 10$  nm, il vaut  $1/\gamma_- = 93$  ns (cf. équation (2.9)). Le bas de la figure 3.6 montre le stockage et déstockage d'un photon sur une plage temporelle de 35 ns où l'on peut apercevoir la décroissance de la population atomique. L'efficacité de stockage dépend de la probabilité d'inversion atomique maximale obtenue pendant l'excitation. Comme indiqué sur la figure, on obtient ici une inversion maximale de 68%, proche de la valeur obtenue dans des études antérieure pour une BQ unique [Giesz et al., 2016]. Pour que l'état puisse stocker cette excitation il faut synchroniser  $\Delta_{12}(t)$  avec l'impulsion incidente, et ainsi inhiber l'émission au moment propice. En effet, si les BQs sont remises à résonance trop tôt, le photon ne peut pas exciter l'état complètement avant qu'il devienne sombre, mais si elles sont mises à résonance trop tard l'état commence à réémettre le photon avant qu'il ne devienne sombre. Pour rester à 5% de la valeur de stockage maximale il faut que l'erreur en synchronisation entre  $\Delta_{12}$  et la pompe soit inférieure à FWHM/5, ce qui correspond ici à 100 ps.

Étant donné que l'on a besoin de modifier l'état du système pour chaque processus d'absorption/réémission de photons, la question de l'indiscernabilité de ces photons émis successivement se pose. La modification du système n'a lieu qu'au niveau des termes de l'Hamiltonien, qui régit l'évolution cohérente du système. De plus celui-ci est modifié de façon adiabatique de façon à garder les relations de phases bien définies. Ainsi en partant de l'état sous-radiant, excité avec une certaine probabilité au préalable, tous les photons émis lorsqu'un désaccord est appliqué seront indiscernables tant que l'allure de ce désaccord est identique et que le processus est réalisé de façon adiabatique. Ceci reste vrai même quand l'allure spectrale de ces photons n'est pas lorentzienne [Lounis et Orrit, 2005].

## 3.4 Mise en forme d'impulsion

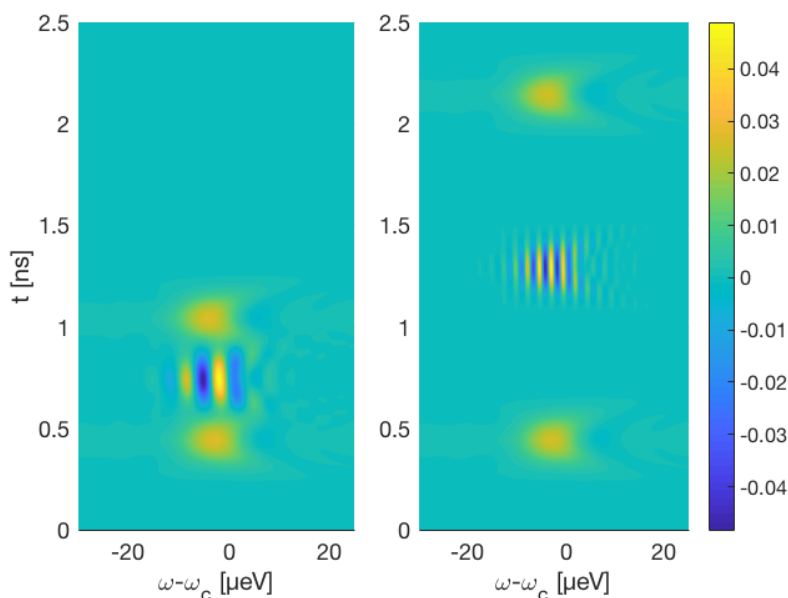
Le contrôle du temps et du taux d'émission peut être davantage développé pour obtenir des impulsions de forme temporelle contrôlée. Il s'agit d'obtenir des photons uniques avec des allures temporelles modifiables à volonté. Pour cela il suffit de pouvoir jouer sur le désaccord  $\Delta_{12}(t)$  pour allumer ou éteindre le couplage avec le mode de cavité pendant que l'émission a lieu. Par exemple si cela est fait plusieurs fois avant que l'excitation soit totalement émise, alors la probabilité de détecter le photon émis



**Figure 3.7** – Puissance moyenne émise à travers la cavité (c) pour un désaccord en deux temps (b). En bleu, temps d'attente entre les deux désaccords égal à 1,4 ns, en rouge temps d'attente de 0,3 ns. Le spectre correspondant à l'émission est présenté en (d) et correspond à un peigne de fréquences dont l'espacement entre les dents dépend du temps d'attente des impulsions temporelles. La population atomique est tracée en (a).

sera partagée en plusieurs séquences dans le temps. La figure 3.7 montre le cas de deux impulsions séparées dans le temps, divisant la fonction d'onde du photon en deux. La puissance moyenne émise (c) montre deux pics qui suivent les désaccords appliqués (b) sur les deux BQs. L'espacement entre ces désaccords est arbitraire, tout en respectant le temps maximal de stockage. La population atomique, tracée en (a), diminue à chaque application de désaccord. Pour les deux exemples tracés sur la figure, le taux de population finale est le même, ici 63%<sup>4</sup>. Il dépend du temps total pendant lequel les BQs ont été désaccordées et des valeurs maximales de désaccord choisi. Le spectre du photon émis est calculé à partir de l'équation (3.11) et il est tracé en (d). Il correspond à un peigne en fréquence dont l'écart entre les dents dépend du temps d'attente  $\Delta t$  choisi entre les deux pics dans le domaine temporel. La largeur totale du

4. La population atomique est maintenue élevée pour obtenir une émission du photon assez rapide. Pour des applications de qu-bit temporel une post-sélection sur la détection du photon à des temps longs devra être réalisée.



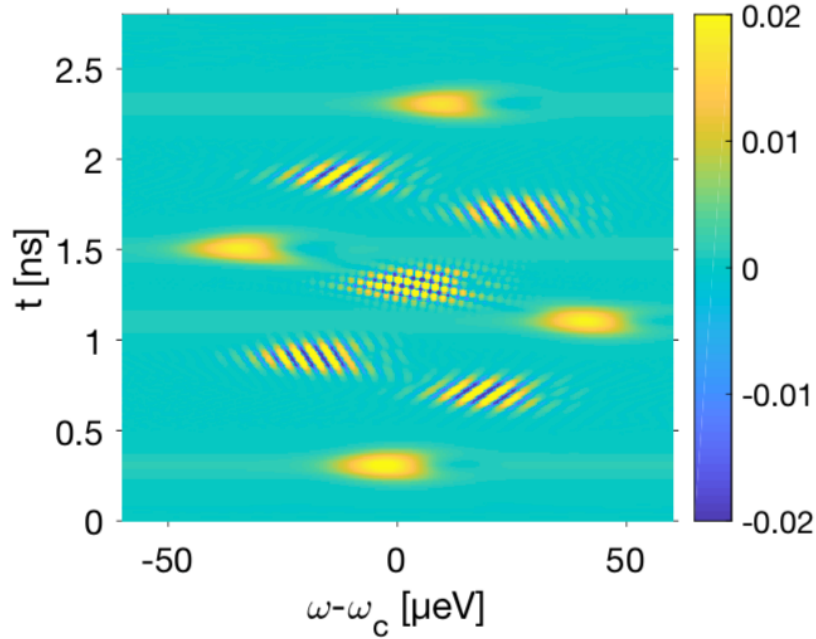
**Figure 3.8** – Fonction de Wigner-Ville du champ émis pour les deux désaccords appliqués de la figure 3.7 : à gauche lorsque  $\Delta t = 0,3$  ns et à droite pour  $\Delta t = 1,4$  ns. Les interférences entre les deux impulsions temporelles font apparaître les oscillations en fréquences. Plus les pics sont séparés dans le temps, plus les oscillations sont rapides.

peigne est égale à l'inverse de la durée  $\tau$  d'une des impulsions temporelles. Ainsi les deux exemples en rouge et bleu de la figure ont la même largeur totale de spectre mais les dents sont plus rapprochées pour le cas bleu avec  $\Delta t = 1,4$  ns que pour le rouge où  $\Delta t = 0,3$  ns. La superposition d'un photon en deux paquets temporels distincts permet par exemple l'implémentation d'un encodage dans le temps de l'information [Brendel et al., 1999]. Le système présenté ici permet d'obtenir ces qubits temporels. De plus, il est facile d'étendre cette procédure pour obtenir une superposition du photon unique dans plus que deux paquets temporels. C'est ce que l'on appelle des qudits temporels, utiles pour des applications dans l'information quantique [Su et al., 2009].

Pour mieux étudier le spectre d'émission de ces états il est possible d'étudier la fonction de Wigner-Ville [1948] du photon émis dans les deux cas, tracée sur la figure 3.8. Son expression est donnée pour une détection sur une fenêtre de temps  $[0, T]$  par :

$$W(t, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-T/2+|t-T/2|}^{T/2-|t-T/2|} d\tau \left\langle a^\dagger\left(t + \frac{\tau}{2}\right) a\left(t - \frac{\tau}{2}\right) \right\rangle e^{-i\omega\tau}. \quad (3.19)$$

Elle correspond à la transformée de Fourier des corrélations du champ dans le temps et permet d'obtenir une décomposition spectrale du signal dans le temps. Les lobes



**Figure 3.9** – Etat compas d'un photon unique obtenu qui émis avec la même probabilité à 4 endroits distincts dans le domaine espace-fréquence. Le décalage de la fréquence d'émission est réalisé en modifiant la fréquence moyenne des deux BQ  $\omega_0$ , alors que le décalage dans le temps est obtenu avec la même procédure que dans la figure 3.8.

en jaune correspondent au signal émis à travers le mode de cavité. Des oscillations apparaissent à mi-distance entre ces pics, et sont le produit d'interférences entre la probabilité d'émettre un photon à l'instant  $t - \tau/2$  et un photon à l'instant  $t + \tau/2$ . Ils montrent que le processus d'émission reste cohérent même pour des impulsions exotiques. Comme visible sur la figure, la fonction de Wigner-Ville prend des valeurs négatives. Ceci est vrai pour toute émission temporelle de forme non-gaussienne.

Le système décrit dans ces deux chapitres reste un défi côté fabrication. Cependant, une fois obtenu, une extension simple possible serait l'ajout d'une contrainte supplémentaire qui agirait de la même façon sur les deux BQs (par exemple mécanique), pour ainsi modifier la fréquence moyenne  $\omega_0$  des deux BQs. Ceci permettrait tout d'abord de régler l'inconvénient de la dérive en fréquence lorsqu'on règle la bande passante d'émission  $\omega_{|- \rangle_{\text{eff}}} = \omega_0 - \sqrt{\Omega_{12}^2 + \Delta_{12}^2}$ . De plus avec ce degré de liberté supplémentaire il deviendrait possible d'obtenir des formes bien plus complexes dans le domaine temps/fréquence. Par exemple sur la figure 3.9 on a tracé un état compas d'un photon unique. Il correspond à une superposition du photon dans quatre endroits distincts dans l'espace temps-fréquence formant un carré. Cet état présente des variations rapides dans l'espace des phases dues aux interférences entre les probabilités d'émission

du photon unique. L'utilisation de ce type de superposition a été proposé pour une utilisation dans la métrologie quantique [Howard *et al.*, 2018].

## 3.5 Résumé

L'état collectif de deux BQs en interaction fournit un mode sous-radiant qui est contrôlable électriquement à des échelles de temps pouvant aller jusqu'à quelques picosecondes. Le but de ce chapitre a été d'étudier la dynamique temporelle de cet état placé en cavité en régime Purcell. L'application d'un champ électrique externe sur une durée inférieure au temps caractéristique d'émission/absorption, a permis de proposer une nouvelle génération de sources de photons uniques. Le nouveau degré de liberté consiste à jouer sur la différence de fréquence entre les deux atomes pour modifier l'état sous-radiant. Le système se comporte alors comme un dipôle accordable, efficacement couplé au mode de cavité. Il est donc possible pour la première fois de contrôler le temps caractéristique et la bande passante d'émission de photons uniques tout en maintenant une forte brillance et un grande efficacité quantique. Ce contrôle du taux d'émission permet en outre de stocker des photons uniques à large bande et donc d'agir en tant que mémoire quantique. Finalement, en modulant le champ électrique appliqué, il est possible d'obtenir des qubits temporels ou même une mise en forme d'impulsion qui peut être appliquée à la métrologie quantique ou à l'émission de photons en exponentielle inversée. Dans les deux chapitres précédents, nous avons utilisé l'état sous-radiant et la possibilité de contrôler sa durée de vie par contrôle de l'écart en fréquence. Ceci revient à contrôler le moment dipolaire effectif de l'état. Il faut noter que ce moment dipolaire pilote la force du couplage de l'état à la cavité et aux modes du vide.

Dans le chapitre suivant, nous explorons la possibilité de réduire le couplage aux modes du vide sans pour autant affecter le couplage à la cavité. En d'autres termes, on va chercher à être sélectif dans le couplage aux modes, on parlera de radianse sélective.

# Radiance sélective et coopérativité géante d'un état antisymétrique couplé à un mode plasmonique

## Introduction

L'utilisation de cavités optiques ou de résonateurs plasmoniques permet d'exalter le couplage lumière-matière avec des systèmes d'émetteurs. Jusqu'à présent nous avons considéré des systèmes avec des géométries simples, où le mode de cavité et les modes à pertes ont la même symétrie spatiale. Cela se traduit par des termes de couplage dipolaire ayant le même rapport de phase pour les deux BQs, quel que soit le mode électromagnétique auquel elles se couplent. Ainsi, si l'état pris en compte est l'état symétrique des deux BQs, celles-ci se couplent mieux à la fois au mode de cavité et aux modes à pertes, on parle alors d'état superradiant. Inversement, si l'état atomique considéré est l'état anti-symétrique, celui-ci se couple moins bien à tous les modes et on parle d'état sous-radiant. C'est pourquoi l'image simple, qui permet de décrire l'état collectif des deux BQs dans ce cas de figure, est celle d'une BQ unique avec un dipôle effectif dont la norme dépend du rapport de phase entre les deux BQs. On pouvait alors jouer sur le désaccord entre les deux BQs pour modifier la valeur de ce dipôle.

Le but de ce chapitre est d'étudier un système où le couplage au mode de cavité possède une symétrie différente de celle des modes du vide. L'objectif est d'obtenir une interface lumière-matière efficace, où l'état atomique est couplé efficacement à un mode photonique d'intérêt, et en même temps, où les pertes dans les autres modes sont inhibées. Pour cela, on va faire en sorte que les atomes émettent de façon superradiante dans le mode de cavité, mais surtout, qu'ils émettent de façon sous-radiante dans les autres modes. On parle alors de radiance sélective dans un mode photonique donné, terme qui a été introduit par [Asenjo-Garcia et al. \[2017\]](#).



#### 4 Radiance sélective et coopérativité géante d'un état antisymétrique couplé à un mode plasmonique

La modification de l'émission de lumière en fonction du mode considéré oblige à redéfinir les paramètres obtenus pour des dipôles uniques en cavité, tels que la coopérativité, et par extension, le facteur de Purcell. Prenons comme premier exemple le cas usuellement considéré, de  $N$  atomes indépendants couplés à un même mode de cavité. Le mot indépendant signifie que les atomes sont assez éloignés les uns des autres pour se coupler chacun à un continuum différent. Cependant, le mode de cavité étant assez étendu spatialement, les atomes peuvent se coupler simultanément à lui. Il peut alors y avoir émission cohérente dans ce mode. Dans le cas où l'émission a lieu en phase pour les  $N$  atomes, on parle de superradiance et le couplage  $g_N$  à la cavité de ce mode est exalté :  $g_N = \sqrt{N}g_1$ . Par contre, étant donné que les atomes émettent de façon indépendante dans les modes à pertes, le taux d'émission  $\gamma$  dans ces modes n'est pas modifié. Ainsi, la coopérativité qui compare l'émission dans le mode de cavité par rapport à l'émission dans les autres modes est exaltée :  $C_N = \frac{2g_N^2}{\kappa\gamma} = NC_1$ , où  $g_1$  et  $C_1$  sont les paramètres pour un émetteur unique, et  $\kappa$  désigne la largeur en fréquence du mode de cavité. Cet effet est à l'origine du terme de coopérativité [Bonifacio et Lugiato, 1976; Hassan, Drummond, et Walls, 1978], qui signifie une exaltation collective du couplage au mode de cavité. C'est le cas de figure étudié au paragraphe 2.2, pour deux BQs en cavité.

Dans ce chapitre, nous allons voir en quoi l'application du concept de radianse sélective, que l'on vient d'introduire, permet d'aller au delà de l'augmentation d'un facteur  $N$  de la coopérativité. Cette idée a été mise en avant par Plankensteiner et al. [2017], pour un réseau d'atomes froids dans une cavité Fabry-Perot. Pour obtenir une émission sélective dans le mode de cavité, les auteurs proposent de coupler les atomes à un mode de cavité d'ordre supérieur, avec plusieurs ventres de signe opposé, pour exciter des états antisymétriques des dipôles. Ainsi, ces états antisymétriques sont efficacement couplés au mode de cavité. Par ailleurs, si leur distance est comparable ou inférieure à la longueur d'onde d'émission, alors ces états sont sous-radiants vis-à-vis des modes du vide, ils ont un taux d'émission dans ces modes  $\gamma_-$  plus faible que le taux d'émission d'un atome unique, ce qui permet d'obtenir des coopérativités élevées. Dans leur modèle, les auteurs ont besoin d'une dizaine d'atomes pour obtenir des effets significatifs, dans un système réaliste, par rapport au cas usuel de  $N$  dipôles indépendants. Leur principale difficulté réside dans la marge de manœuvre réduite des cavités Fabry-Perot pour obtenir des profils du champ électrique complexes.

Pour obtenir des effets comparables à ceux prédits par les auteurs, mais avec uniquement deux atomes, on propose d'utiliser des résonateurs plasmoniques. Ces derniers permettent d'obtenir des profils du champ électrique très variés, avec notamment des

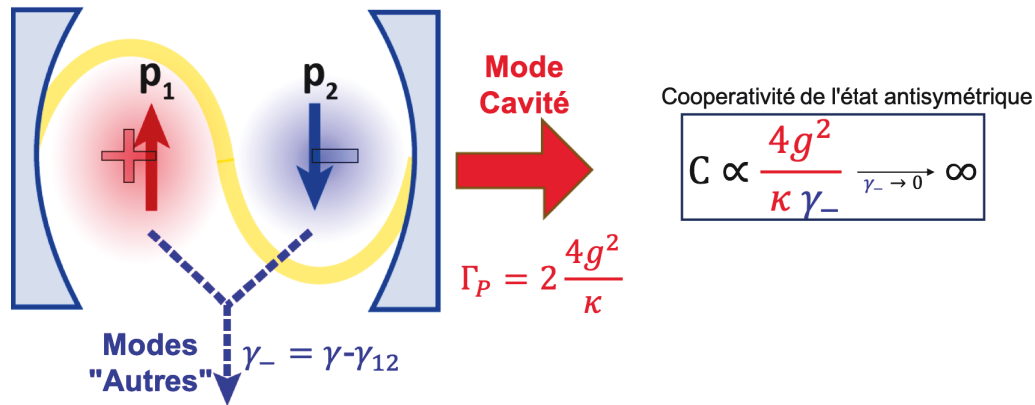
modes antisymétriques, le tout dans des volumes sub- $\lambda^3$ . Le mode plasmonique permet alors d'exciter efficacement l'état antisymétrique d'atomes placés très proches l'un de l'autre par rapport à la longueur d'onde d'émission. Nous allons démontrer qu'avec uniquement deux émetteurs, couplés à des structures plasmoniques simples, il est possible d'obtenir des coopérativités un ordre de grandeur plus importantes que celles obtenues avec un dipôle unique.

Pour décrire les spécificités des modes plasmoniques utilisés nous allons, dans ce chapitre, adopter un formalisme classique. En effet, contrairement au cas d'une cavité Fabry-Perot, les modes plasmoniques ont des allures spatiales complexes, avec des pertes importantes. Des procédures existent pour quantifier le champ des modes de telles structures [Chen, Sandoghdar, et Agio, 2013] mais nous allons nous satisfaire d'une description classique, permettant de modéliser le système numériquement. En effet, dans la limite de basse puissance, ou quand il y a une seule excitation dans le système, les équations quantiques décrivant l'évolution du système se réduisent aux équations d'oscillateurs couplés [Diniz *et al.*, 2011; Tanji-Suzuki *et al.*, 2011]. On ne pourra par contre pas modéliser proprement les effets de saturation ni de statistique de la lumière émise, ce qui sera laissé pour une étude ultérieure. Les deux émetteurs seront donc modélisés par des dipôles ponctuels, décrits par leur polarisabilité. Ils seront indifféremment désignés par la suite comme dipôles, émetteurs ou atomes.

Le plan du chapitre est le suivant. Tout d'abord on va détailler le concept d'excitation antisymétrique, et on présentera le système utilisé. On démontrera ensuite que ce système permet d'exciter efficacement l'état sous-radiant des émetteurs. Enfin, on introduira le concept de facteur de Purcell généralisé au cas de plusieurs émetteurs et on montrera en quoi la radianse sélective permet d'exalter ce facteur de Purcell.

## 4.1 Radianse sélective plasmonique

Dans cette partie nous allons détailler le concept d'excitation antisymétrique. Considérons un système de deux atomes couplés à un même mode de cavité. Deux canaux de désexcitation différents existent : soit les émetteurs peuvent émettre à travers le mode de cavité, soit ils peuvent émettre à travers tous les autres modes, comme représenté sur la figure 4.1. Sans perte de généralité, on se place en régime de mauvaise cavité  $\kappa \gg \gamma$ . Dans ce cas, la cavité agit comme un canal d'émission privilégié pour les émetteurs. Les deux atomes représentés par leur dipôle  $\mathbf{p}_i$ , avec  $i \in \{1,2\}$ , interagissent avec le mode de cavité avec un terme de couplage  $g_i = \mathbf{p}_i \mathbf{E}_i$ , où  $\mathbf{E}_i$  correspond au champ du mode au point d'emplacement du  $i$ -ème atome. Aux



**Figure 4.1** – Schéma de principe : deux dipôles à proximité interagissent avec un mode antisymétrique d'une cavité. Le champ électrique du mode de cavité au niveau de chaque dipôle est de signe opposé et excite les atomes dans l'état sous-radiant. Ceux-ci émettent à travers le mode de cavité à un taux Purcell  $\Gamma_P$ . Le taux d'émission de l'état sous-radiant dans les modes autres que celui de cavité est fortement inhibé lorsque les atomes sont proches par rapport à  $\lambda$  :  $\gamma_- = \gamma - \gamma_{12} \ll \gamma$ . La coopérativité pour l'état antisymétrique, proportionnelle au rapport des taux d'émission  $\Gamma_P$  et  $\gamma_-$ , est donc fortement exaltée lorsque  $\gamma_-$  tend vers 0 tout en gardant  $\Gamma_P$  non nul.

chapitres précédents on considérait que le champ du mode fondamental de cavité était le même aux deux points où sont situés les atomes, soit  $\mathbf{E}_1 = \mathbf{E}_2$ . Ce mode interagit alors efficacement avec l'état atomique symétrique, où les deux émetteurs sont en phase. En prenant deux émetteurs identiques  $\mathbf{p}_1 = \mathbf{p}_2$ , on obtient  $g_1 = g_2$ . Regardons à présent ce qu'il se passe si chaque atome est couplé à un lobe différent d'un mode d'ordre supérieur de la cavité. Ainsi, comme représenté sur la figure 4.1, si ces lobes sont en opposition de phase, le mode de cavité va interagir le mieux avec l'état collectif où les deux dipôles sont aussi en opposition de phase. Ainsi  $\mathbf{E}_1 = -\mathbf{E}_2$  et  $\mathbf{p}_1 = -\mathbf{p}_2$ . On obtient à nouveau une égalité des forces de couplages  $g_1 = g_2$ , même si l'état atomique excité est maintenant l'état antisymétrique. Il devient donc possible d'exciter efficacement l'état antisymétrique des deux dipôles par l'intermédiaire de la cavité. Or, comme on l'a vu, si les deux atomes sont à une distance  $d < \lambda$ , alors leur émission dans les modes autres que ceux de la cavité est modifiée. Dans le cas de l'état antisymétrique, le taux d'émission est diminué, par interférence destructive, d'une quantité  $\gamma_{12}$  dont l'expression est donnée en (2.9). Le taux d'émission dans les modes à pertes de l'état antisymétrique s'écrit :  $\gamma_- = \gamma - \gamma_{12}$ . Finalement, on obtient la situation idéale où les atomes sont efficacement couplés au mode de cavité, mais où l'émission dans les autres modes est inhibée. Le système se comporte alors comme

une excellente interface lumière-matière, où il est possible d'exciter un état atomique efficacement, sans que celui-ci ne perde l'excitation ni sa cohérence par interaction avec des modes du vide. Inversement, une fois cet état excité, il va émettre son excitation avec une grande probabilité dans le mode désiré, et celle-ci pourra être efficacement collectée. L'efficacité d'excitation et d'émission est habituellement caractérisée par deux paramètres : la coopérativité et le facteur de Purcell. Ce système devrait donc se traduire par une coopérativité, et donc un facteur de Purcell, exalté. Avant de les calculer on va expliquer comment généraliser ces paramètres pour le cas à plusieurs émetteurs.

#### 4.1.1 Coopérativité et facteur de Purcell généralisés

La coopérativité est obtenue en écrivant le facteur de transmission d'une cavité contenant  $N$  atomes [Bonifacio et Lugiato, 1976]. D'habitude, le couplage au mode de cavité pour chaque atome est considéré comme étant identique. Plankensteiner et al. [2018] ont généralisé ces équations au cas d'un couplage arbitraire de chaque atome avec le mode de cavité. Ils démontrent que la coopérativité s'écrit simplement en remplaçant le couplage au mode de cavité d'un atome unique  $g$  et son taux d'émission dans l'environnement  $\gamma$  par les valeurs de l'état atomique considéré. Ainsi, pour un état atomique antisymétrique, il suffit de remplacer  $g$  par le couplage au mode de cet état, et remplacer  $\gamma$  par  $\gamma_-$ . Avec un mode de cavité excitant l'état antisymétrique de deux dipôles placés à proximité l'un de l'autre on obtient :

$$C_{\text{antisym}} = \frac{4g^2}{\kappa(\gamma - \gamma_{12})}. \quad (4.1)$$

On peut voir que la coopérativité généralisée peut prendre des valeurs très élevées lorsque  $\gamma_{12} \rightarrow \gamma$ , c'est-à-dire lorsque les atomes sont très proches. Dans cette expression on a pris  $g = |g_i|$ . On suppose donc que l'intensité de l'interaction avec le mode de cavité est la même pour les deux dipôles.

Lorsqu'on étudie le système du point de vue de l'émission des atomes, on parle plutôt du facteur de Purcell, qui permet de caractériser l'efficacité de l'émission dans le mode de cavité par rapport à l'émission dans les autres modes. Ce facteur peut être calculé en utilisant la règle d'or de Fermi. Pour un mode de cavité Fabry-Perot la densité d'états s'écrit comme l'inverse du taux de désexcitation de la cavité  $\kappa$ , et on obtient une expression pour le facteur de Purcell égale à celle obtenue pour la coopérativité, à un facteur près de l'ordre de l'unité. Pour des systèmes plus complexes,

tels que ceux qui seront étudiés dans ce chapitre, il est nécessaire de mieux détailler l'expression de la densité des modes. Pour ce faire plutôt que d'exprimer le facteur de Purcell en tant que rapport de taux d'émission, on utilise une définition équivalente qui consiste à le décrire comme un rapport de puissances émises [Novotny et Hecht, 2012]. Ainsi, si l'on note  $P_{\text{tot}}$  la puissance totale émise en présence de la structure<sup>1</sup> et  $P_0$  la puissance émise dans le milieu homogène alors, le facteur de Purcell pour un atome s'écrit :

$$F_P = \frac{P_{\text{tot}} - P_0}{P_0}. \quad (4.2)$$

Cette définition prend en compte la puissance radiative et non radiative. L'intérêt de cette méthode est de pouvoir généraliser le facteur de Purcell même pour un système classique de dipôles oscillants. De plus, à partir de cette expression, on pourra calculer numériquement le facteur de Purcell, quelle que soit la structure plasmonique considérée.

Grâce à cette définition il est à présent possible d'obtenir l'expression du facteur de Purcell du système qui nous intéresse : un état antisymétrique de deux atomes couplés à un mode de résonateur. Les deux atomes sont décrits par deux dipôles  $\mathbf{p}_1$  et  $\mathbf{p}_2$  placés en  $\mathbf{r}_1$  et  $\mathbf{r}_2$ . La puissance émise par un dipôle oscillant au point  $\mathbf{r}$  s'écrit  $P = \mathbf{j}(\mathbf{r})\mathbf{E}(\mathbf{r})$ , où  $\mathbf{j}(\mathbf{r}') = -i\omega\mathbf{p}\delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r})$  est le courant, et  $E(\mathbf{r})$  le champ total en ce point. En absence d'excitation extérieure, le champ total en  $\mathbf{r}_1$  est la somme du champ produit par  $\mathbf{p}_1$  sur lui même et du champ produit par  $\mathbf{p}_2$  en ce point. En utilisant le tenseur de Green il s'écrit :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_1) = \mu_0\omega^2(\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)\mathbf{p}_1 + \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\mathbf{p}_2). \quad (4.3)$$

Ainsi on obtient la puissance émise par le premier dipôle :

$$\begin{aligned} P_1 &= \frac{1}{2}\text{Re}[\mathbf{j}_1^*\mathbf{E}(\mathbf{r}_1)] \\ &= \frac{1}{2}\text{Im}[\mathbf{p}_1^*\mu_0\omega^3(\overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)\mathbf{p}_1 + \overleftrightarrow{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)\mathbf{p}_2)]. \end{aligned} \quad (4.4)$$

L'état antisymétrique est obtenu pour deux dipôles parallèles en opposition de phase, soit  $\mathbf{p}_1 = -\mathbf{p}_2$ . Si on considère que les deux dipôles sont orientés selon l'axe  $y$  La projection sur l'axe des dipôles donne l'équation scalaire :

$$P_1 = \frac{1}{2}|p_1|^2\mu_0\omega^3[G_{yy}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) - G_{yy}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)]. \quad (4.5)$$

---

1. C'est-à-dire la puissance émise dans le mode de cavité, et dans tous les autres modes.

Les tenseurs de Green exprimés ici prennent en compte l'environnement électromagnétique total. Par linéarité, ils peuvent être décomposés en une partie correspondant à un milieu homogène,  $G_{yy}^0$ , et à une partie provenant de la diffusion par le milieu résonant,  $G_{yy}^D = G_{yy} - G_{yy}^0$ . De plus la symétrie du tenseur de Green impose  $G_{ij}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = G_{ji}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}_1)$ ; la puissance émise par les deux dipôles est donc  $P_{\text{tot}} = P_1 + P_2 = 2P_1$ . Ainsi la puissance émise par les sources due à la présence de la structure s'écrit simplement en remplaçant le tenseur de Green total par sa composante diffusée :

$$P_{\text{tot}} - P_0 = |p_1|^2 \mu_0 \omega^3 \text{Im} \left[ G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) - G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \right]. \quad (4.6)$$

En divisant par la puissance émise par les deux sources dans un milieu homogène on obtient l'expression du facteur de Purcell généralisé :

$$F_P = \frac{\text{Im} \left[ G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) - G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \right]}{\text{Im} \left[ G_{yy}^0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) - G_{yy}^0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \right]}. \quad (4.7)$$

Tout comme pour un émetteur unique, cette expression peut être interprétée comme un rapport de densité d'états. En effet, la partie imaginaire du tenseur de Green d'un atome sur lui-même traduit directement la densité d'états électromagnétiques locale [Joulain et al., 2003]. Pour un émetteur unique polarisé selon l'axe  $y$  l'expression du facteur de Purcell peut donc s'écrire  $F_P = \text{Im}[G_{yy}^D(\mathbf{r}_1)]/\text{Im}[G_{yy}^0(\mathbf{r}_1)]$ . Le facteur de Purcell pour deux atomes (4.7) a une expression qui ressemble à celle d'un atome unique, à condition de corriger la densité d'états locale par un terme croisé  $\text{Im}[G_{yy}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)]$ . Ce terme a été baptisé densité d'états croisés par Cazé, Pierrat, et Carminati [2013], et il traduit la cohérence spatiale de modes photoniques entre deux points  $\mathbf{r}_1$  et  $\mathbf{r}_2$ , indépendamment des conditions d'éclairement. Cette quantité renseigne sur l'extension spatiale des modes. Ici, nous montrons que c'est cette quantité qui contrôle la durée de vie d'un état collectif de deux émetteurs. A noter que cette expression peut facilement être généralisée pour le cas de  $N$  émetteurs, en prenant en compte la contribution de toutes les densités d'états croisées. A partir de l'équation (4.7) il est facile de comprendre en quoi l'état sous-radiant permet d'obtenir une exaltation du facteur de Purcell. En effet, pour deux atomes à une distance  $d$  petite par rapport à  $d < \lambda$ , le tenseur de Green homogène croisé  $G_{yy}^0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$  tend vers  $G_{yy}^0(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)$ . Ce qui signifie que le dénominateur tend vers 0. Dans le cas général ceci ne se traduit pas par une exaltation de  $F_P$  car, pour des résonateurs habituels, la partie diffusée  $G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$

tend aussi vers  $G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1)$ , annulant par la même occasion le numérateur. En effet, dans le cas d'une cavité Fabry-Perot, les ventres des modes sont par définition à une distance minimum égale à la demi longueur d'onde de résonance. Pour coupler chaque atome à un ventre du mode de symétrie opposée, il faut qu'ils soient placés à une distance  $d$  de l'ordre de  $\lambda/2$ . Il est donc compliqué d'obtenir à la fois une excitation du mode antisymétrique par le mode de cavité, et une émission collective sous-radiante dans les autres modes, puisque cette dernière impose  $d < \lambda$ . La solution proposée par [Plankensteiner et al. \[2017\]](#) consiste à utiliser plusieurs atomes couplés à un mode de cavité de Gauss-Hermite d'ordre (21,0), mais ils précisent que ce mode ne devrait pas être stable expérimentalement.

#### 4.1.2 Antenne plasmonique avec un mode antisymétrique

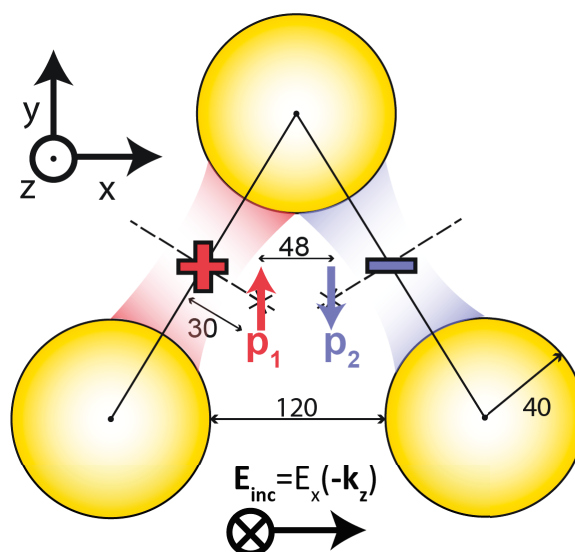
C'est ici qu'interviennent les résonateurs plasmoniques. Ceux-ci permettent de travailler en champ proche et d'obtenir des modes aux allures complexes pour des distances inférieures à la longueur d'onde. Il est donc possible d'obtenir des modes dont les ventres résonnent en opposition de phase à des distances  $d \ll \lambda$ . Ce qui se traduit par  $G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) < 0$ <sup>2</sup>, et donc  $G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) - G_{yy}^D(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) > 0$ , et de façon non-négligeable même pour  $|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2| \ll \lambda$ . Le numérateur de l'expression du facteur de Purcell (4.7) reste donc non négligeable, alors que le dénominateur tend vers 0 : ainsi  $F_P$  peut être exalté.

Pour qu'une structure permette d'obtenir une telle exaltation, elle doit vérifier deux conditions : il faut que la résonance comporte deux ventres, placés à une distance bien inférieure à  $\lambda$  et oscillant en opposition de phase. La solution que l'on a trouvée qui vérifie ces conditions est schématisée sur la figure 4.2. Elle consiste en un trimère de sphères d'or disposées en triangle, qui lorsqu'il est excité par une onde plane polarisée suivant  $x$ , excite un mode dont la composante du champ électrique selon  $y$  présente deux lobes, de signes opposés. Il est alors possible de placer deux émetteurs, chacun couplé à un des lobes, à une distance  $d < \lambda$ . Ainsi, le dipôle est excité de façon antisymétrique. L'état excité peut donc émettre à travers le mode plasmonique de façon efficace, alors que l'émission dans les autres modes est inhibée par interférence destructive. C'est le principe de la radiance sélective.

Le système plasmonique des trois sphères a été choisi parce qu'il permet de réduire le temps de calcul, grâce à l'expression analytique des modes à partir de la

---

2. Ce qui veut dire que la composante selon  $y$  du champ d'un atome sur l'autre change de signe.



**Figure 4.2** – Schéma de la structure étudiée. Trois sphères d'or forment un triangle équilatéral et présentent un mode dont la composante verticale du champ,  $E_y$ , a deux lobes principaux, de signes opposés, schématisés en rouge et bleu. Si l'on place deux dipôles, chacun en interaction avec un des lobes, ils seront excités de façon antisymétrique. Pour cela, le système est éclairé par une onde plane  $\mathbf{E}_{\text{inc}} = E_x(-\mathbf{k}_z)$ . Les distances sont indiquées par les flèches noires, l'unité est le nm.

théorie de Mie. Tout autre système plasmonique présentant des résonances, avec des ventres antisymétriques placés à proximité, peut être utilisé. Les résultats qui suivent constituent avant tout une preuve de principe et pourront être optimisés en fonction des contraintes expérimentales.

## 4.2 Excitation efficace de l'état sous-radiant

La première expérience qui est modélisée pour mettre en évidence une exaltation de la coopérativité, est une expérience de diffusion. En effet, comme précisé dans l'introduction, la coopérativité est interprétée comme une densité optique exaltée par la cavité [Plankensteiner et al., 2018]. La réponse du trimère de sphères d'or sera donc modifiée par la présence des dipôles, d'autant plus fortement que la coopérativité est élevée. Les calculs sont réalisés avec un programme développé par Jean-Paul Hugonin [Bai et al., 2013] qui utilise une méthode modale de Fourier. Pour cela on étudie le spectre diffracté du système lorsqu'on l'éclaire avec une onde plane monochromatique dont la fréquence est balayée autour de la résonance plasmonique. L'indice de l'or est simulé par un modèle de Drude-Lorentz [Olmon et al., 2012]. Les dipôles sont



#### 4 Radiance sélective et coopérativité géante d'un état antisymétrique couplé à un mode plasmonique

modélisés par une polarisabilité lorentzienne orientée uniquement selon  $y$  :

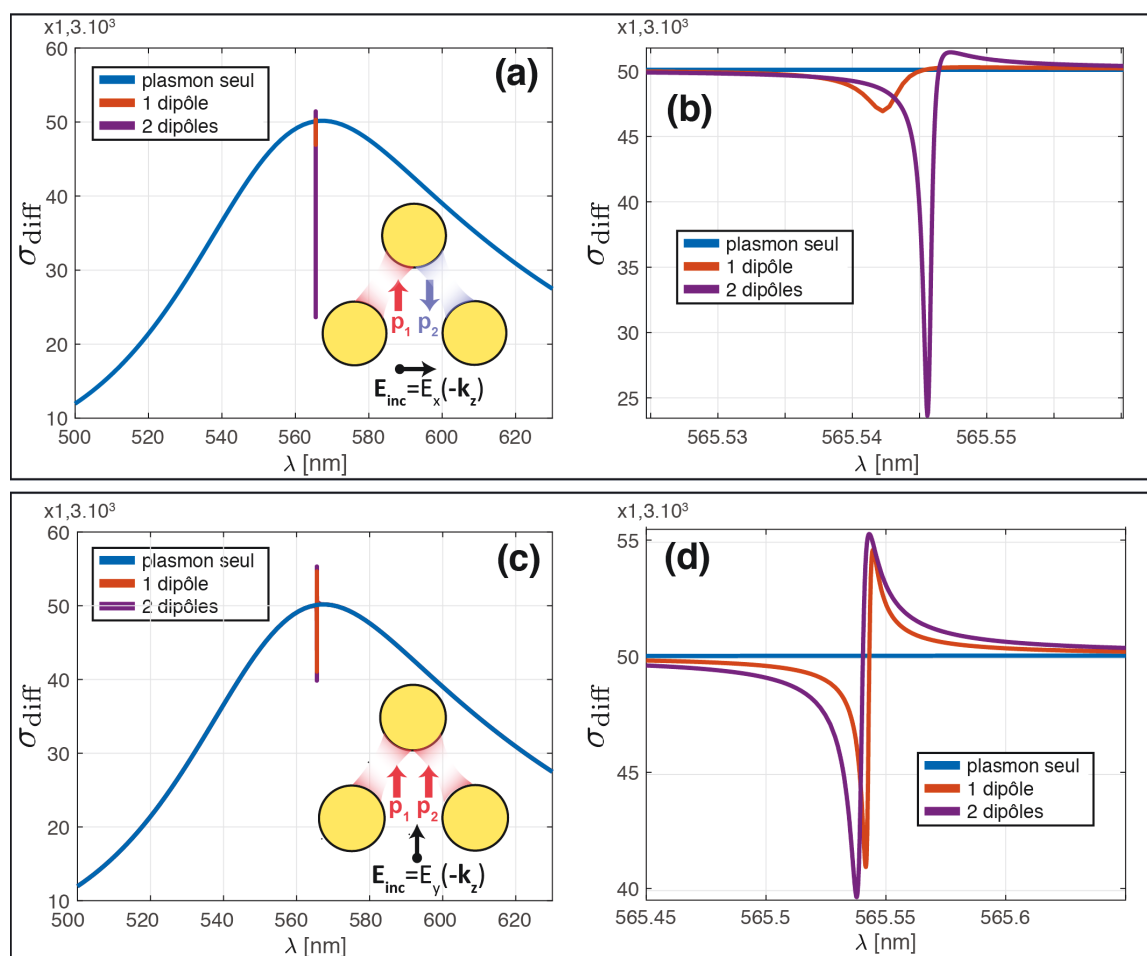
$$\overleftrightarrow{\alpha}(\omega) = \frac{6\pi c^3 \gamma_{rad}}{n\omega^2(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma)} \mathbf{e}_y \otimes \mathbf{e}_y, \quad (4.8)$$

avec  $\omega = 2\pi c/\lambda$ ,  $\omega_0$  est la fréquence de résonance des dipôles, et  $n$  l'indice optique du milieu.  $\gamma$  désigne les pertes totales, c'est le terme qui entre en jeu dans la coopérativité ; pour l'instant on ne prend en compte que les pertes radiatives des atomes en absence de déphasage pur soit  $\gamma = \gamma_{rad}$ . Cette polarisabilité permet de décrire un émetteur générique. A l'état solide, il peut s'agir par exemple de centre colorés [Bogdanov et al., 2018], de molécules [Chikkaraddy et al., 2016], ou de BQs colloïdales [Belacel et al., 2013] ou épitaxiées [Gazzano et al., 2011]. Le taux d'émission choisi est  $\gamma = 12$  GHz, ce qui correspond à un temps de vie  $1/\gamma = 83$  ps. Ce taux est plus élevé que pour un émetteur colloïdal usuel, il est choisi ainsi pour augmenter la visibilité des résonances. La facteur de Purcell (4.7) ne dépendant pas du dipôle, cela n'aura aucun effet sur les résultats obtenus.

Le résultat de la simulation est présenté sur la figure 4.3. On trace le flux diffusé, correspondant au flux total intégré autour d'une sphère entourant l'objet, moins le flux incident de l'onde plane, en fonction de la longueur d'onde d'excitation. La résonance plasmonique, est représentée en bleu ( $Q \sim 6$ ). Le spectre de diffusion est tracé en orange lorsqu'il y a un seul émetteur, et en violet lorsqu'il y en a deux. Les émetteurs sont placés comme indiqué sur la figure 4.2. Ils sont décalés de 30 nm vers le centre du triangle équilatéral pour que, lorsqu'il y a deux émetteurs, ils soient assez proches l'un de l'autre, à une distance  $d = 48$  nm.

Les figures 4.3(a,b) présentent le cas d'une excitation par une onde plane polarisée selon  $x$  :  $\mathbf{E}_{inc} = E_x(-\mathbf{k}_z)$ . Dans ce cas, la résonance plasmonique fait apparaître des composantes du champ selon  $y$  antisymétriques, représentées en bleu et rouge sur le schéma placé en insert. Les réponses faisant intervenir les dipôles sont des résonances de Fano. Lorsqu'il n'y a qu'un dipôle interagissant avec ce mode, (uniquement  $\mathbf{p}_1$ , spectre en orange), un léger creux apparaît au niveau de la résonance de cet dipôle. Par contre, lorsque l'on considère le cas de deux dipôles ( $\mathbf{p}_1$  et  $\mathbf{p}_2$ , spectre en violet), placées comme indiqué sur la figure 4.2, on voit apparaître un creux de réflectivité environ 9 fois plus prononcé que celui d'un seule dipôle, cf. plan rapproché sur la figure 4.3(b), alors que la résonance reste spectralement fine. Par ailleurs, la fréquence de résonance est décalée de 3 pm vers le rouge par rapport à la fréquence de résonance d'un émetteur unique.

Pour vérifier que cette exaltation de la réponse des émetteurs est bien due à



**Figure 4.3** – Section efficace de diffusion du système plasmonique seul (bleu), avec un dipôle (orange), ou deux dipôles (violet). Les dipôles sont anisotropes, orientées selon y, et sont placés comme indiqué sur la figure 4.2. La figure (a) correspond au cas d’une excitation par une onde plane polarisée selon x comme indiqué sur le schéma en insert, et (c) par une onde plane polarisée selon y. (b) et (d) sont des plans rapprochés des spectres (a) et (c) respectivement.

l’excitation de l’état antisymétrique, on trace sur les figures 4.3(c,d) les spectres de diffusion lorsque l’onde plane incidente est polarisée selon y :  $\mathbf{E}_{\text{inc}} = E_y(-\mathbf{k}_z)$ . Tous les autres paramètres sont maintenus identiques par ailleurs. L’onde plane incidente va cette fois exciter le mode plasmonique avec des ventres oscillant en phase, comme représenté en rouge sur le schéma en insert.

Le spectre de diffusion du mode plasmonique (en bleu) a visiblement la même réponse qu’avant. En revanche, la réponse des dipôles est maintenant très différente. La résonance Fano d’un seul dipôle, est plus prononcée que dans le cas précédent, parce que son axe de polarisation est aligné avec la polarisation de l’onde plane incidente.

De plus, lorsqu'on s'intéresse au cas des deux dipôles, on peut voir que la résonance est seulement plus prononcée de 10% par rapport au cas du dipôle unique. De plus la résonance est cette fois, légèrement décalée vers le bleu.

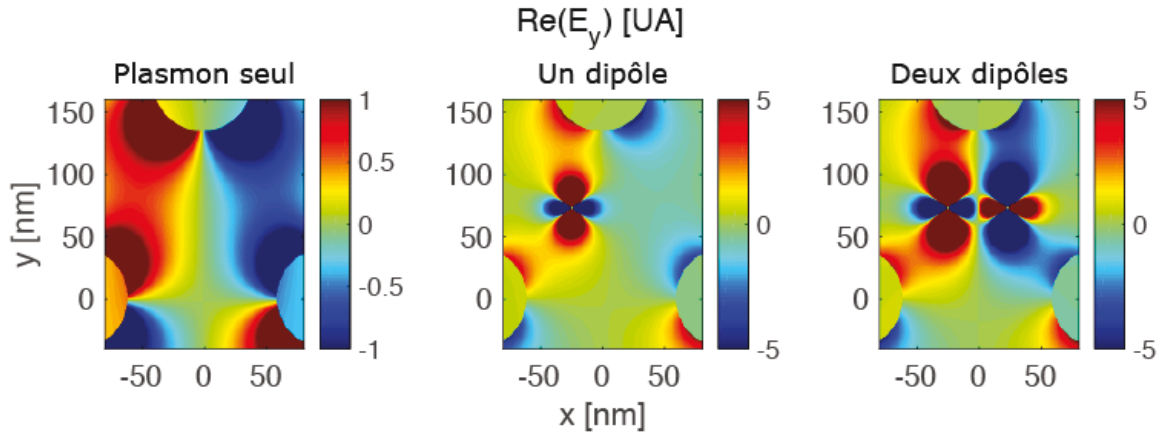
Pour expliquer toutes ces observations, il suffit de détailler l'état atomique qui est excité dans les deux cas. Dans le premier cas, lorsque le mode plasmonique excite l'état antisymétrique des deux dipôles, on obtient l'effet de coopérativité géante dû à une émission inhibée dans les autres modes. Dans le deuxième cas, lorsque le mode plasmonique excite l'état symétrique des deux dipôles, l'émission n'est pas inhibée dans les autres modes, et la coopérativité est faiblement modifiée par rapport au cas d'une seule polarisabilité. On est alors dans le cas de figure étudié au chapitre 2, où le mode superradiant a une émission exaltée dans la cavité, mais aussi dans les autres modes du vide. Ces deux effets s'annulent dans l'expression de la coopérativité, et celle ci reste inchangée.

Cette interprétation est confirmée par le décalage de la fréquence de résonance, qui est décalée vers les longueurs d'onde plus grandes dans le cas antisymétrique, et vers les longueurs d'ondes plus petites dans le cas symétrique. Ce décalage provient du (faible) couplage dipôle-dipôle. Il est décrit par la partie réelle du tenseur de Green homogène d'un dipôle sur l'autre, que l'on notait  $\Omega_{12}$  aux chapitres précédents, et dont l'expression est donnée par l'équation (2.4), valable pour une distance inter-dipôle  $d \ll \lambda$  :

$$\Omega_{12} = \gamma \frac{3}{4(kd)^3}, \quad (4.9)$$

où  $k = 2\pi n/\lambda$ . A partir de cette expression on obtient un décalage théorique en longueur d'onde de  $\Delta\lambda = 3,2$  pm. Cette valeur est cohérente avec la valeur obtenue à partir du spectre de diffusion d'environ 3 pm. Les résonances de Fano donnent une incertitude de l'ordre de  $\gamma$  sur la fréquence de résonance, ce qui correspond à une incertitude sur la longueur d'onde de l'ordre de 3 pm. Plus d'exemples seront donnés en annexe 4.A en fonction de la distance entre les deux dipôles.

Le deuxième point qui confirme l'interprétation de l'excitation de l'état collectif est donné par la largeur des résonances. Ces largeurs sont proportionnelles aux pertes totales de l'état considéré. Comme on peut le voir sur la figure 4.3(b), la résonance de l'état antisymétrique est légèrement plus étroite que la résonance d'un dipôle unique. En effet, l'émission de l'état antisymétrique est inhibée dans les modes autres que celui de la cavité. Il a une largeur qui ne provient que des pertes dans le mode de cavité, alors que le dipôle unique émet dans tous les modes. Ainsi, même si l'excitation du mode antisymétrique est efficace, sa largeur en fréquence reste étroite. Pour le cas



**Figure 4.4** –  $\text{Re}(E_y)$  lorsqu'on éclaire le système par une onde plane  $\mathbf{E}_{\text{inc}} = E_x(-\mathbf{k}_z)$ . Les trois cas présentés sont : le plasmon seul, le plasmon avec un dipôle, et le plasmon avec deux dipôles. On peut voir que le mode plasmonique a bien deux ventres de signe opposés. Le dipôle seul est placé entre les deux sphères d'or de gauche, comme précisé sur la figure 4.2. Il se couple à un seul des ventres. Les deux dipôles sont quant à eux couplés chacun à un ventre différent. Ils sont excités à travers le mode plasmonique et sont donc en opposition de phase, ce qui entraîne une interférence destructive de leur émission. La longueur d'onde d'excitation est définie à partir du spectre de diffusion, pour bien exciter la résonance de l'état considéré, cf. figure 4.3.

symétrique (figure 4.3(d)), le taux d'émission est multiplié par un facteur 2 dans tous les modes, dû à un effet de superradiance. Le résonance devrait donc être environ deux fois plus large que pour un dipôle unique. Bien que difficile à quantifier du fait des allures des résonances Fano, la largeur spectrale est visiblement plus large pour le cas symétrique que pour un seul dipôle.

Pour mettre en évidence le mécanisme d'interférence à l'origine de l'exaltation de la coopérativité de l'état sous-radiant, on trace à présent la partie réelle du champ  $E_y$  sur la figure 4.4. Le système est éclairé par une onde plane polarisée selon  $x$ . On fait cela pour trois cas différents, pour le cas des sphères seules, puis pour un dipôle couplé au trimère et finalement pour deux dipôles couplés au trimère. La partie réelle de la composante selon  $y$  du champ permet de bien visualiser la phase de chaque ventre. En absence d'émetteurs, le mode plasmonique montre bien une résonance avec deux lobes oscillant en opposition de phase. Maintenant, si un émetteur seul est placé entre deux sphères, il interagit principalement avec l'un des lobes. Lorsque deux émetteurs sont introduits, un de chaque côté, chacun interagit avec un lobe différent. Ils sont donc excités en opposition de phase. L'interférence destructive de l'émission en opposition de phase de chaque émetteur est bien visible sur la figure 4.4 de droite. C'est cette

interférence qui inhibe l'émission dans les modes autres que celui de cavité, et qui permet d'exalter la coopérativité de l'état sous-radiant.

La valeur exacte de la coopérativité est difficile à déduire des spectres de diffusion, lorsque le résonateur n'est pas une simple cavité Fabry-Perot. Il est plus facile de calculer le facteur de Purcell, qui ne dépend que d'un rapport de puissances émises. C'est ce qui est fait dans le paragraphe suivant.

### 4.3 Exaltation du facteur de Purcell

On va à présent étudier le système en régime d'émission. Ceci va nous permettre de calculer la valeur du facteur de Purcell pour les différents états atomiques. Pour le calculer, on applique la formule obtenue à l'équation (4.2), qui compare la puissance émise dans le mode plasmonique à la puissance émise dans les autres modes :  $F_P = \frac{P_{\text{tot}} - P_0}{P_0}$ . Comme on l'avait fait remarqué, ce calcul ne dépend pas de la valeur du dipôle de chaque émetteur. Il ne dépend que des densités d'états locales et croisées, exprimées uniquement grâce au tenseur de Green, comme dans l'équation (4.7).

En pratique, il suffit donc de calculer la puissance émise par un dipôle oscillant unitaire. Pour le cas d'un dipôle unique, la puissance émise en présence du trimère et dans le milieu homogène est calculée, et on déduit directement le facteur de Purcell. On obtient  $F_P = 0,36$ , pour un émetteur placé comme schématisé sur la figure 4.2 pour le dipôle  $\mathbf{p}_1$ . Comme prévu, la structure utilisée n'est pas très efficace. Ceci est notamment dû à la grande distance de l'émetteur par rapport aux sphères d'or, qui vaut au minimum 84 nm dans le cas considéré. On peut en déduire le facteur  $\beta = \frac{F_P}{F_{P+1}} = 26\%$ , c'est à dire l'atome unique n'émet que 26% de sa puissance dans le mode du résonateur.

La même méthode est utilisée pour calculer le facteur de Purcell pour deux émetteurs. En plus de  $\mathbf{p}_1$ , on considère un deuxième dipôle  $\mathbf{p}_2$  placé comme sur la figure 4.2. Pour calculer le facteur de Green de l'état antisymétrique il faut calculer le champ émis par chaque dipôle, lorsque ceux-ci sont en opposition de phase. Par linéarité le calcul peut être réalisé en deux étapes, dipôle par dipôle. C'est-à-dire on place d'abord  $\mathbf{p}_1$  en  $\mathbf{r}_1$ , on calcul le champ électrique aux deux points  $\mathbf{r}_1$  et  $\mathbf{r}_2$  où sont placés les dipôles, puis on place ensuite  $\mathbf{p}_2$  en  $\mathbf{r}_2$ , avec une amplitude opposée à  $\mathbf{p}_1$ , et on calcule le champ dans les deux mêmes points. Ceci est fait en présence du trimère puis dans le milieu homogène. On applique ensuite l'équation (4.7) pour obtenir le facteur de

Purcell de l'état antisymétrique. On obtient :

$$F_{P,\text{antisym}} = 1,8 = 5F_P. \quad (4.10)$$

Le facteur de Purcell pour l'état antisymétrique est 5 fois plus grand que pour un émetteur unique. Il émet donc de façon privilégiée dans le mode de cavité. En effet le facteur  $\beta$  vaut à présent  $\beta = 65\%$ . L'utilisation d'un mode antisymétrique plasmonique permet donc d'exciter l'état sous-radiant et d'obtenir une exaltation plus prononcée du facteur de Purcell par nombre d'émetteurs que le facteur  $N$  obtenu usuellement.

Pour mieux détailler les différentes contributions à cette radiance sélective, on compare les émissions dans le milieu homogène et l'émission en présence de la structure pour le cas d'un dipôle unique et pour l'état antisymétrique. Le principal effet recherché dans ce chapitre est l'inhibition de l'émission dans le vide par effet de sous-radiance. Pour quantifier cet effet on calcule le rapport de la puissance émise par l'état sous-radiant  $P_{0,\text{antisym}}$  par la puissance émise par un dipôle unique dans un milieu homogène  $P_0$ . Les dipôles sont à une distance de  $d = 48$  nm. On obtient :

$$\frac{P_{0,\text{antisym}}}{P_0} = \frac{\text{Im}\left[G_{yy}^0(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_1) - G_{yy}^0(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2)\right]}{2\text{Im}\left[G_{yy}^0(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_1)\right]} = 12\%, \quad (4.11)$$

où le facteur 1/2 provient de la normalisation de l'état antisymétrique. Cette expression peut se calculer analytiquement à partir du tenseur de Green dans un milieu homogène (cf. équation (2.3)). Elle est aussi égale au rapport des taux d'émission  $\frac{\gamma_-}{\gamma}$ , avec  $\gamma_- = \gamma - \gamma_{12}$ . Ainsi l'émission de deux dipôles antisymétriques placés à 48 nm de distance dans un milieu d'indice  $n = 1,5$  est égale à 12% de celle émise par un dipôle unique. Le facteur de Purcell de l'état antisymétrique devrait donc être exalté d'un facteur  $1/0,12 = 8,3$ , ce qui n'est pas le cas dans notre système où l'on a obtenu uniquement un facteur 5 (cf. équation (4.10)). Pour comprendre d'où vient cette différence on compare à présent l'émission dans le mode de cavité.

Les rapports des puissances dans le mode du trimère est calculé numériquement. Il s'obtient en calculant l'émission totale à laquelle on retranche l'émission dans le milieu homogène :

$$\frac{P_{\text{antisym}} - P_{0,\text{antisym}}}{P - P_0} = \frac{\text{Im}\left[G_{yy}^D(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_1) - G_{yy}^D(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_2)\right]}{2\text{Im}\left[G_{yy}^D(\mathbf{r}_1,\mathbf{r}_1)\right]} = 64\%. \quad (4.12)$$

Contrairement à ce qui était recherché, les dipôles n'interfèrent pas constructivement à travers le mode de cavité lorsqu'ils émettent en opposition de phase, leur émission est légèrement inférieure à celle d'un dipôle unique. En effet, la structure simple du trimère qui a été choisie, est décrite par plusieurs modes autre que celui antisymétrique. Contrairement à l'onde plane utilisée dans le calcul de la section efficace de diffusion, les dipôles peuvent exciter ces modes qui vont diminuer le couplage global de l'état antisymétrique à la structure plasmonique. Cependant, contrairement au cas du mode fondamental d'une cavité Fabry-Perot, le couplage de l'état antisymétrique à la structure plasmonique n'est pas nul, et il est ici proche du couplage obtenu avec un dipôle unique. Cela permet d'obtenir au final une exaltation du facteur de Purcell pour l'état antisymétrique par rapport au dipôle unique. Le facteur 5 d'exaltation est retrouvé en comparant les résultats des équations (4.12) et (4.11).

Pour obtenir un effet plus prononcé il est possible de rapprocher les émetteurs entre eux, et de les rapprocher aux antennes d'or. Pour deux dipôles à 10 nm l'un de l'autre, placés à 20 nm de la sphère d'or du haut, on obtient un facteur de Purcell pour l'état antisymétrique  $F_{P,\text{antisym}} = 320!$  Cette valeur est 15 fois plus élevée que pour un dipôle unique placé à ce même endroit ( $F_P = 21$ ). Même si ces valeurs extrêmes dépendent très fortement des paramètres exacts choisis, il apparaît clairement que l'utilisation de l'effet de radiance sélective permet d'obtenir des facteurs de Purcell, et donc des coopérativités, géants. L'intérêt est double : l'état antisymétrique peut être efficacement excité et peut émettre avec une probabilité proche de l'unité dans le mode plasmonique. De plus, même avec des structures plasmoniques simples et non optimisées comme celle présentée dans ce chapitre, on obtient des effets significatifs.

## 4.4 Discussion

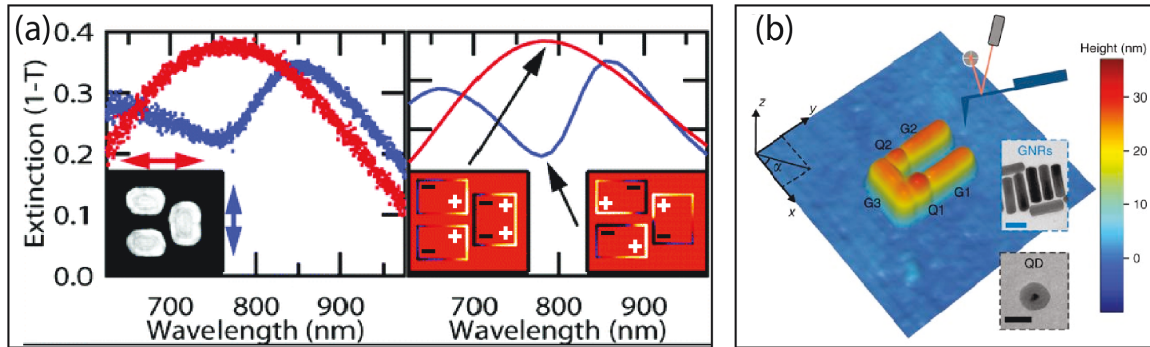
Dans cette section nous allons détailler les points critiques à prendre en compte en vue de la fabrication d'un système tel que présenté précédemment. Deux points principaux sont à étudier. Tout d'abord, la possibilité d'obtenir des modes plasmoniques antisymétriques, avec, en outre, un placement des émetteurs contrôlé. Deuxièmement, nous allons préciser les contraintes sur les imperfections des émetteurs. En particulier, on étudiera l'impact de deux paramètres difficiles à contrôler expérimentalement dans ce genre de systèmes : le désaccord fréquentiel entre les deux émetteurs, et le déphasage pur.

#### 4.4.1 Système plasmonique anti-symétriques

La principale contrainte de fabrication concernant le système plasmonique est d'obtenir un mode plasmonique avec des lobes en opposition de phase, proches l'un de l'autre. De plus il doit être possible de coupler deux émetteurs à chacun des lobes, tout en gardant une distance sub-lambda entre eux. Comme on l'a vu, il n'est pas nécessaire d'obtenir des modes plasmoniques très efficaces, avec des facteurs de qualité trop élevés (quelques unités suffisent), et avec des volumes modaux trop confinés. La structure que l'on a proposée pour les calculs, réalisée à partir de sphères d'or de 40 nm de rayon, placées à une distance de 120 nm l'une de l'autre, est directement accessible à une fabrication par lithographie électronique, où les sphères pourraient être remplacées par des disques.

Ce genre de géométrie, exhibant des modes plasmoniques antisymétriques, n'est pas sans rappeler les études de résonances Fano réalisées avec des antennes plasmoniques. L'idée consiste à coupler entre eux des modes dipolaires ou multipolaires de différentes nano-antennes, pour ainsi créer des interférences qui résultent en des résonances Fano prononcées. De nombreuses démonstrations de ce genre de résonances ont été réalisées il y a une dizaine d'années et sont référencées dans les articles de revue de [Luk'Yanchuk et al. \[2010\]](#) et de [Halas et al. \[2011\]](#). Un exemple de système utilisé pour obtenir ces résonances Fano est présenté sur la figure 4.5(a), extraite de l'article de [Verellen et al. \[2009\]](#). Il consiste aussi en un trimère de nanoantennes. Les nanoantennes sont des nanopoutres et toutes trois forment un dolmen. L'allure des résonances varie fortement en fonction des dimensions du système. Dans cet exemple, les nanoantennes sont très proches entre elles, les auteurs montrent l'apparition d'un mode plasmonique antisymétrique qui apparaît comme un creux de diffusion. Contrairement à ces travaux, notre but est d'obtenir des modes plasmoniques brillants, tout en ayant des résonances antisymétriques. Il suffit pour cela d'éloigner suffisamment les nanoantennes pour qu'il n'y ait pas de mode sombre qui se crée. Ces exemples montrent néanmoins que les techniques de fabrication de structures complexes plasmoniques sont très bien maîtrisées. De plus les améliorations récentes dans la synthèse chimique de nanoantennes à forme variable permettent d'obtenir des résonances propres avec des facteurs de qualité plus élevés. Leur assemblage peut être réalisé à partir de diverses techniques, comme par exemple de l'assemblage grâce à l'origami d'ADN [[Acuna et al., 2012](#)], ou par manipulation des antennes avec des pointes AFM [[Ratchford et al., 2011](#)]. Ces deux méthodes permettent aussi de manipuler des émetteurs. La première en fonctionnalisant les émetteurs pour qu'ils soient disposés correctement



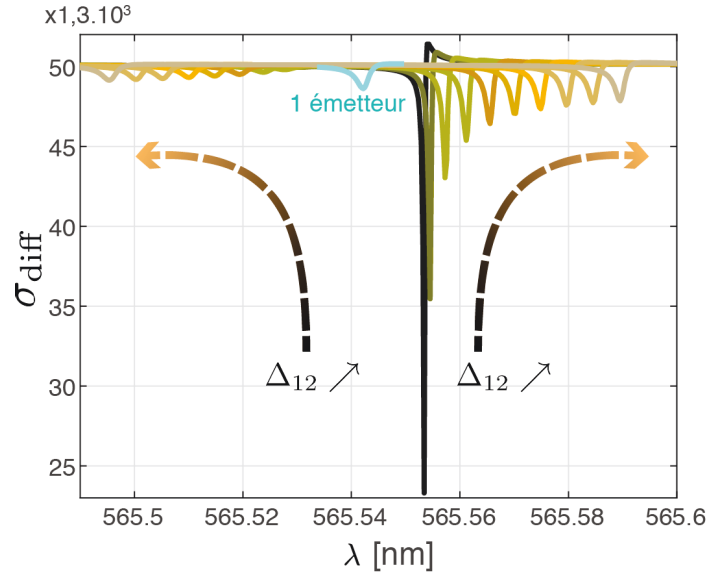


**Figure 4.5** – Exemples de réalisations expérimentales de modes plasmoniques antisymétriques. Les deux structures consistent en un trimère de nanoantennes sous forme de dolmen. (a) Les nanoantennes sont placées très proches l'une de l'autre (environ 20 nm). Selon la polarisation de l'onde plane incidente, le mode excité est différent, avec notamment l'apparition d'un mode antisymétrique. (b) Une autre structure plasmonique en dolmen, fabriquée par manipulation à l'AFM. Des BQs colloïdales (sphériques) sont en outre placées entre les nanoantennes. (a) extrait de [Verellen *et al.*, 2009]. (b) extrait de [Tang *et al.*, 2018].

après arrangement de l'ADN [Szychowski, Pelton, et Daniel, 2018]. La deuxième permet par exemple de disposer des BQs colloïdales en les déplaçant aussi avec la pointe AFM. Un exemple, extrait des travaux de Tang *et al.* [2018] est présenté sur la figure 4.5(b). Les auteurs arrivent à fabriquer une structure plasmonique en dolmen, avec des BQs placées entre les nanoantennes. C'est exactement ce genre de système qui permettrait d'observer des effets de coopérativité géante. Cette étude a cependant été réalisée à température ambiante où le déphasage est important, et avec des BQs colloïdales non identiques, ce qui empêche l'observation d'effets collectifs. La section suivante permettra de préciser les domaines de fonctionnement de ces deux paramètres.

#### 4.4.2 Robustesse au désaccord et au déphasage pur

Tout comme aux chapitres précédents, l'exaltation de la coopérativité obtenue ici provient d'effets collectifs entre deux émetteurs. Tous les processus qui induisent une décohérence entre les deux émetteurs vont avoir une influence sur la réponse du système. Les deux principaux effets sont le déphasage pur et le désaccord en fréquence. Regardons tout d'abord l'effet du désaccord en fréquence sur la réponse du système. Pour cela on trace sur la figure 4.6 le spectre de diffusion des deux émetteurs couplés au trimère pour différents désaccords fréquentiels  $2\Delta_{12}$  entre les



**Figure 4.6** – Section efficace de diffusion en fonction du désaccord en fréquence des deux émetteurs  $2\Delta_{12} = \omega_1 - \omega_2$ . Dix spectres pour des désaccords  $2\Delta_{12} \in [0, 270 \mu\text{eV}]$  sont considérés. Le spectre à résonance est tracé en noir, et en turquoise on trace le spectre de référence pour un seul émetteur. Les paramètres utilisés sont les mêmes que sur la figure 4.2, à l’exception du décalage des dipôles vers le centre du triangle, qui est égal à 40 nm au lieu de 30 nm. Les deux dipôles sont donc à une distance de 31 nm entre eux. L’onde plane d’excitation est polarisée selon  $x$ . Au fur et à mesure que les dipôles sont désaccordés, l’effet collectif est perdu et la résonance de l’état antisymétrique est de moins en moins prononcée, jusqu’à tendre au cas de l’émetteur unique pour  $\Delta_{12} \simeq 5\Omega_{12}$ .

deux émetteurs. En noir est tracé le cas à résonance, puis les émetteurs sont désaccordés et on trace les spectres pour dix valeurs de désaccord total  $2\Delta_{12} = \omega_1 - \omega_2$ . On prend  $2\Delta_{12} \in [0, 270 \mu\text{eV}]$ . On voit que très rapidement la résonance, exaltée par l’état sous-radiant, perd en intensité. De même, au fur et à mesure que le désaccord est augmenté, l’état superradiant (de symétrie opposée au mode plasmonique), apparaît à des longueurs d’ondes de résonances plus basses. De plus les deux états collectifs (effectifs) sont respectivement décalés vers le rouge et le bleu d’une valeur  $\sqrt{\Omega_{12}^2 + \Delta_{12}^2}$ , où  $\Omega_{12} = \gamma \frac{3}{4(kd)^3}$ . On retombe exactement sur le cas des chapitres précédents, avec un rôle inversé de l’état sous-radiant et superradiant. En effet c’est l’état sous-radiant qui est efficacement couplé au mode à résonance, et l’état superradiant qui commence à se coupler dès lors que les émetteurs sont désaccordés. L’effet collectif est perdu pour des désaccords importants, et on retrouve le comportement d’émetteurs uniques (affiché en turquoise sur la figure). Ici le désaccord caractéristique où l’effet collectif est perdu est de l’ordre de  $\Delta_{12} = 50 \text{ pm}$ . Pour vérifier que le désaccord entrave les effets collectifs on

peut comparer cette valeur à la force de couplage entre les deux émetteurs  $\Omega_{12}$ . Celle-ci est obtenue à partir de la partie réelle du tenseur de Green homogène comme indiqué à l'équation (4.9). Les spectres ont été simulés pour deux émetteurs placés à 31 nm l'un de l'autre. A cette distance, le couplage dipôle-dipôle est égal à 67 GHz, équivalent à 11 pm. Ainsi, dès que  $\Delta_{12} \simeq 5\Omega_{12}$ , on perd l'effet collectif. Cette contrainte est assez forte pour la plupart des émetteurs colloïdaux classiques, où les désaccord usuels se comptent à partir du nanomètre. Pour espérer obtenir ces résultats il faut donc utiliser des émetteurs avec de très faibles largeurs inhomogènes. Une première option consiste à utiliser des molécules fluorescentes incorporées dans des matrices de polymères [Pazzagli et al., 2018]. Une deuxième option serait l'utilisation de centres colorés. Non seulement ceux-ci peuvent être incorporés de façon déterministe à des points précis d'un échantillon par implantation à faisceau ionique, mais en plus la largeur inhomogène caractéristique est assez faible pour obtenir au moins deux émetteurs à des fréquences très proches. Ainsi, Evans et al. [2018] ont réussi à obtenir deux centres SiV dans une cavité à cristal photonique, avec un désaccord fréquentiel de  $2\pi \times 0.56$  GHz, et un déphasage pur négligeable grâce à l'utilisation de cryostats à dilution. En intégrant ces émetteurs dans une cavité plasmonique telle que proposée à la section précédente, l'effet de coopérativité géante pourrait être observé directement.

#### 4.4.3 Influence du déphasage pur

Le déphasage pur se traduit par une perte aléatoire de la phase de l'oscillation du dipôle. Elle peut intervenir par interaction avec des phonons, ou avec des charges parasites. Pour les modéliser dans le formalisme classique, il suffit de modifier l'expression de la polarisabilité de l'équation (4.8). Il faut pour cela rajouter un terme supplémentaire  $\gamma_{\text{deph}}$  au taux  $\gamma$ . Celui-ci va élargir la résonance du dipôle, sans augmenter la force d'oscillateur. La résonance dipolaire n'est alors plus Fourier limitée. Encore une fois, les effets collectifs sont visibles tant que le taux de déphasage reste inférieur au terme d'interaction dipôle-dipôle :  $\gamma_{\text{deph}} \lesssim \Omega_{12}$ . Il est donc impossible d'observer les effets prédits dans des systèmes à température ambiante.

## 4.5 Résumé

Les effets collectifs en cavité sont usuellement étudiés pour des modes optiques à symétrie simple, présentant une seule résonance. C'est le cas par exemple des modes

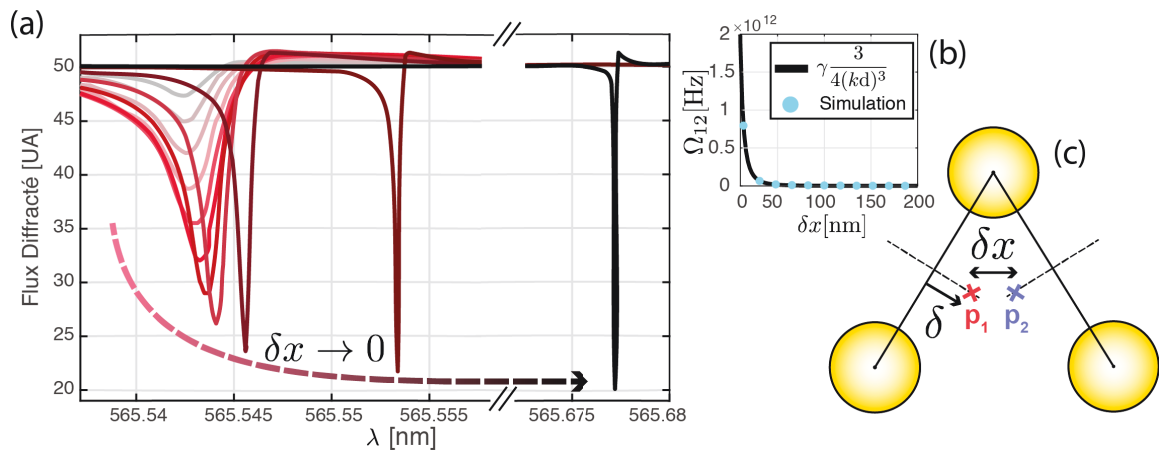
fondamentaux des cavités Fabry-Perot. Dans ce chapitre nous avons mis à profit le confinement apporté par les résonances d'antennes plasmoniques pour pouvoir étudier les effets collectifs de deux dipôles, couplés à un mode antisymétrique plasmonique. On a montré que grâce à ce mode, il est possible d'exciter efficacement l'état antisymétrique atomique, spectralement étroit, par une onde plane incidente. Cet état, même si efficacement couplé au mode plasmonique, a une émission réduite dans tous les autres modes du système, dû à l'interférence destructive par effet de sous-radiance. L'inhibition de l'émission dans les modes du vide, tout en maintenant une émission non négligeable dans le mode plasmonique, permet d'obtenir des coopérativités, ou facteur de Purcell, exaltées de plus d'un ordre de grandeur par rapport au cas d'un émetteur unique. Cet effet de radiance sélective permet d'obtenir d'excellentes interfaces lumière-matière où l'interaction avec un mode précis est privilégiée. Par la suite, il sera intéressant d'explorer les effets non linéaires, qui sont d'autant plus importants que la coopérativité est élevée.



# Annexe

## 4.A Influence de la distance entre émetteurs

On étudie ici l'influence de la séparation des émetteurs sur les mesures de section efficace de diffusion. Cela permet que l'effet obtenu provient d'un couplage à l'état antisymétrique. La figure 4.7 présente les spectres de diffusion pour différentes séparations entre les deux émetteurs, déplacés selon l'axe indiqué sur la figure (c) d'une valeur  $\delta$ . Ce décalage induit une modification de la distance entre les deux dipôles notée  $\delta x$ . Plus les émetteurs sont proches, plus la longueur d'onde de résonance est décalée vers le rouge. La résonance apparaît aussi plus étroite. Ceci est dû à la diminution du taux d'émission dans les modes autres que celui de cavité par interférence destructive, mais aussi dû à une réduction du couplage au mode de cavité, à cause de l'éloignement du point chaud. Le décalage en fréquence suit bien la valeur théorique attendue pour



**Figure 4.7** – Section efficace de diffusion pour différentes distance entre les deux émetteurs. (a) Schéma indiquant les notations : les deux émetteurs sont respectivement translatés selon la médiatrice. La distance par rapport au milieu des deux sphères est notée  $\delta$ . En faisant varier  $\delta$  pour chaque émetteur, la distance entre les deux émetteurs  $\delta x$  est modifiée. Onze séparations sont étudiées, avec  $\delta$  allant de  $-50$  nm à  $+50$  nm, ce qui correspond à  $\delta x \in [187$  nm;  $13$  nm]. Les spectres correspondants sont présentés en (b). Plus la distance entre les deux émetteurs  $\delta x$  est petite, plus la résonance est prononcée. De plus il y a un décalage progressif de la longueur d'onde de résonance vers le rouge dû au couplage dipôle-dipôle.

4 *Radiance sélective et coopérativité géante d'un état antisymétrique couplé à un mode plasmonique*

deux dipôles  $\Omega_{12} = \gamma \frac{3}{4(kd)^3}$ , comme indiqué sur la figure (c).

# Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

## Introduction

L'étude d'un nombre réduit d'émetteurs permet de modéliser de façon déterministe le comportement collectif du système. C'est ce qui a été fait lors des trois derniers chapitres et qui a permis de mieux comprendre les contributions individuelles des interactions entre les émetteurs et du couplage au résonateur. Ces effets sont très sensibles aux paramètres des émetteurs, notamment à leur position et à la différence de fréquence entre ceux-ci. Pour alléger les contraintes de fabrication afin d'observer les effets collectifs, une possibilité consiste à augmenter le nombre d'émetteurs. En utilisant une grande assemblée d'émetteurs, on arrive à faire en sorte qu'une certaine partie de l'ensemble ait les propriétés recherchées (même fréquence, position adéquate), et d'autre part on augmente la contribution des effets collectifs sur la réponse du système. De plus, l'utilisation d'un grand nombre d'émetteurs amplifie par la même occasion le couplage avec le mode de cavité comme démontré pour la première fois par [Kaluzny et al. \[1983\]](#). En effet, le terme de couplage dipolaire augmente comme le dipôle atomique, qui pour  $N$  émetteurs peut être jusqu'à  $\sqrt{N}$ <sup>1</sup> fois plus grand. Cependant, pour décrire ce genre de systèmes, il faut adopter une vision statistique et ainsi rendre compte de l'énorme quantité de degrés de liberté qui le décrivent. C'est cette approche de grandes assemblées d'émetteurs qui a permis par exemple de démontrer l'existence de couplage fort avec des résonateurs optiques, avant de tendre par la suite vers le couplage fort avec quelques émetteurs ou avec un émetteur unique. Le couplage fort a été démontré entre des systèmes atomiques et des résonateurs très variés :

- D'abord avec des cavités micro-ondes et des atomes froids [[Kaluzny et al., 1983](#)] ou avec un unique atome de Rydberg [[Rempe, Walther, et Klein, 1987](#)].

---

1. Pour un état normalisé.



## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

- Ensuite à des fréquences optiques avec des cavités à grande finesse et des assemblées d'atomes [Raizen *et al.*, 1989] avant la démonstration en 1992 du couplage fort avec un atome unique [Thompson, Rempe, et Kimble, 1992].
- Cette même année, à l'état solide entre des excitons dans des puits quantiques et des cavités Fabry-Pérot [Weisbuch *et al.*, 1992], puis douze ans plus tard avec une boîte quantique unique dans un micropilier [Reithmaier *et al.*, 2004] ou dans un cristal photonique [Yoshie *et al.*, 2004].
- A l'état solide à nouveau, avec un unique qubit supraconducteur dans le domaine micro-onde [Wallraff *et al.*, 2004].
- Finalement avec des résonateurs plasmoniques et des assemblées de molécules [Bellessa *et al.*, 2004; Dintinger *et al.*, 2005; Melnikau *et al.*, 2016] puis des assemblées de boîtes quantiques [Gómez *et al.*, 2010]. Finalement le couplage fort avec un plasmon et une molécule unique a été obtenu en 2016 [Chikkaraddy *et al.*, 2016].

L'effet le plus souvent recherché lors de l'utilisation d'assemblées d'émetteurs est l'exaltation de l'émission par interférence constructive, ou encore l'exaltation du couplage au mode par interaction cohérente avec celui-ci. Dans les deux cas cela peut-être vu comme la contribution d'un état superradiant, où les émetteurs sont en accord de phase entre eux mais aussi avec le mode optique en considération. La contribution est proportionnelle à  $\sqrt{N}$ , avec  $N$  le nombre d'émetteurs qui agissent dans le processus [Kaluzny *et al.*, 1983]. Cette exaltation collective permet de réaliser les premiers tests de la réponse optique de nouveaux émetteurs et de leur interaction avec des structures résonantes.

Dans ce chapitre nous allons montrer une des premières expériences d'interaction entre un type d'émetteur récent, les nanoplaquettes Ithurria *et al.* [2011], et des plasmons de surface. Les nanoplaquettes (NP) sont des émetteurs colloïdaux semi-conducteurs II-VI se comportant comme des puits quantiques en solution. Parmi les propriétés intéressantes qui seront présentées par la suite, on peut déjà citer leur faible largeur inhomogène et leur capacité à s'empiler, ce qui en fait de bons candidats pour étudier les effets collectifs à faible nombre d'émetteurs.

L'utilisation de plasmons de surface est particulièrement adaptée pour les expérience de couplage avec des émetteurs en solution [Törma et Barnes, 2015] où de nombreuses techniques de dépôt faciles et à bas coût existent. De plus, les structures plasmoniques permettent d'obtenir des champs confinés et intenses, et donc des énergies d'interaction élevées.

Le but de ce chapitre est de mettre en évidence une situation de couplage fort entre

une assemblée de nanoplaquettes et des plasmons de surface grâce à des expériences de réflectivité et de photoluminescence. Il s'agit d'un premier pas dans l'étude du couplage entre ces émetteurs et les structures plasmoniques, dont l'un des objectifs est d'explorer les applications au contrôle d'émission spontanée. En effet, les prouesses de nano-fabrication de structures métalliques permettent de nos jours d'obtenir des résonances plasmoniques très diverses, permettant ainsi de contrôler précisément le profil du champ. Ainsi, la lumière émise par des assemblées d'émetteurs couplés à des résonances plasmoniques peut être directionnelle et polarisée [Greffet *et al.*, 2002]. Un deuxième objectif concerne la description du processus d'émission de lumière par des émetteurs couplés à des plasmons, qui est encore sujette à débat [Melnikau *et al.*, 2016]. Les modèles existants, pour la plupart provenant de généralisations de modèles à un émetteur unique, ne décrivent pas encore correctement les expériences de luminescence [George *et al.*, 2015]. Par exemple, l'extinction de fluorescence d'un émetteur lorsqu'il est placé trop proche de la surface du métal [Carminati *et al.*, 2006], semble disparaître pour une assemblée d'émetteurs [Wang *et al.*, 2018]. Un autre exemple concerne les expériences de fluorescence en présence de couplage fort. Le polariton de plus haute énergie, qui est bien visible dans les expériences de diffusion, ne semble pas émettre de lumière et n'apparaît pas dans toutes les expériences de fluorescence [Neuman *et Aizpurua*, 2018]. Les expériences décrites dans ce chapitre permettront donc de tester de nouvelles propositions développées dans notre groupe [Greffet *et al.*, 2018] où l'ensemble ne peut plus être simplement décrit par les propriétés de la particule unique mais où il faut le considérer comme étant dans un milieu homogène aux propriétés intrinsèquement statistiques.

Le plan du chapitre est le suivant. En premier lieu on repassera les caractéristiques importantes du couplage fort et des plasmons de surfaces. Ensuite on présentera plus précisément les nanoplaquettes avant de décrire les expériences de couplage fort et leur modélisation.

## 5.1 Le couplage fort

Le couplage fort est caractérisé par l'échange cohérent d'excitations entre deux (ou plusieurs) oscillateurs. Il permet d'ouvrir les portes à de nombreuses applications. Pour des interactions à très faible nombre de photons, le couplage fort permet d'obtenir des états intriqués lumière-matière, de réaliser des mesures non-destructives ou encore de préparer le mode optique ou l'état atomique dans un état déterminé [Raimond, Brune, *et Haroche*, 2001].

## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

Le couplage fort présente également de nombreux intérêts même lorsqu'on se place dans un régime semi-classique avec un nombre élevé de photons et d'émetteurs. Dans ce régime, on trouve les systèmes à polaritons obtenus par couplage fort entre des puits quantiques et des cavités optiques. Le couplage fort permet dans ce cas d'obtenir des quasi-particules mélangeant les propriétés des excitons et des photons. Ces systèmes ont permis d'observer la condensation de Bose-Einstein [Deng, Haug, et Yamamoto, 2010], la superfluidité [Amo et al., 2009] et les lasers à polaritons [Imamoglu et al., 1996]. Nombreuses de ces applications ont par la suite été obtenues avec des systèmes plasmoniques en utilisant des émetteurs colloïdaux ou des molécules à température ambiante [Aberra Guebrou et al., 2012; Ramezani et al., 2016; Hakala et al., 2018], où les échelles de temps sont plus courtes et donc où les forces de couplages nécessaires sont plus grandes. Ces nombreux résultats motivent à l'étude du couplage fort avec les nanoplaquettes, qui, comme on le verra par la suite, devraient être particulièrement adaptées pour ce genre d'applications.

Il existe cependant une motivation plus élémentaire à la démonstration du couplage fort entre des nanoplaquettes et des plasmons. Celle-ci vient du fait que les largeurs des modes plasmoniques et des nanoplaquettes à température ambiante (et des systèmes d'émetteurs colloïdaux en général à température ambiante) sont usuellement du même ordre de grandeur, autour de plusieurs dizaines de meV. Lorsque ces deux systèmes sont mis en interaction, le seul moyen d'obtenir une coopérativité supérieure à un est de se placer en régime de couplage fort. En effet, la qualité de l'interaction est déterminée par la coopérativité, l'objectif étant d'avoir  $C = \frac{2g^2}{\gamma_{\text{pl}}\gamma_{\text{émet}}} > 1$ , avec  $g$  la force d'interaction,  $\gamma_{\text{pl}}$  la largeur du plasmon considéré et  $\gamma_{\text{émet}}$  celle de (ou des) l'émetteur. Ainsi pour des largeurs fréquentielles comparables,  $\gamma_{\text{pl}} \sim \gamma_{\text{émet}}$ , on obtient les relations :

$$C > 1 \quad \Rightarrow \quad g \gtrsim \gamma_{\text{pl}} \quad \text{et} \quad g \gtrsim \gamma_{\text{émet}}, \quad (5.1)$$

ce qui correspond à la définition du couplage fort. Il faut bien sûr faire attention aux valeurs exactes des paramètres mis en jeu mais dans tous les cas, on est loin du système de BQs épitaxiées dont les largeurs des résonances sont plusieurs ordres de grandeurs plus faibles que celle du mode optique, et où il est possible d'obtenir des coopérativités  $C \gg 1$  tout en restant en régime de couplage faible. Ainsi le couplage fort entre les NPs et le plasmon permet de s'assurer que la coopérativité soit supérieure à un, et donc, que la probabilité d'interaction soit élevée.

## 5.2 Les plasmons

Nous allons à présent rappeler les propriétés principales des plasmons de surface qui permettent d'obtenir facilement des couplages intenses avec des émetteurs colloïdaux. Les équations de continuité à l'interface entre un métal de permittivité  $\epsilon_m$  et un diélectrique de permittivité  $\epsilon_d$  supposée réelle (sans absorption) permettent de démontrer l'existence d'un mode confiné, appelé plasmon de surface. Son vecteur d'onde parallèle s'écrit <sup>2</sup> :

$$k'_x \simeq \sqrt{\frac{\epsilon'_m \epsilon_d}{\epsilon'_m + \epsilon_d}} \frac{\omega}{c}. \quad (5.2)$$

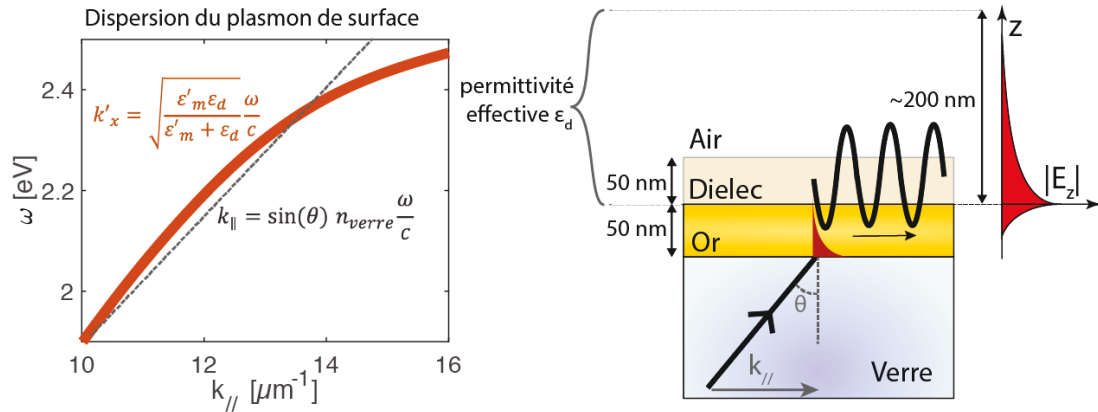
Cette équation permet de tracer directement la relation de dispersion du plasmon de surface. Pour pouvoir coupler ce plasmon au champ lointain il faut qu'il y ait conservation du moment et de l'énergie. Cependant le vecteur d'onde du plasmon est supérieur au vecteur d'onde d'une onde plane  $\frac{\omega}{c} = k_0$  quelle que soit la fréquence. Deux méthodes sont communément appliquées pour obtenir cette égalité des moments, et pouvoir ainsi exciter le mode plasmonique en champ lointain. La première consiste à fabriquer un réseau à l'interface or/air pour obtenir une onde diffractée avec un vecteur d'onde augmenté. La deuxième consiste à utiliser une couche mince de quelques dizaines de nm de métal, que l'on dépose sur un diélectrique transparent d'indice plus élevé (par exemple du verre). L'onde plane dans ce milieu a un vecteur d'onde augmenté d'un facteur  $n_{\text{verre}}$ , et il peut exciter un plasmon à l'interface opposée (or/air) par champ proche, cf. figure 5.1.

Cette configuration, dite de Kretschmann [Kretschmann et Raether, 1968], est celle qui est couramment utilisée pour tous les capteurs basés sur la résonance plasmon de surface (SPR). C'est cette configuration que l'on utilise dans nos expériences. Deux questions se posent dans notre cas : quelle est l'épaisseur de métal idéale, et comment est modifiée la dispersion du plasmon due à l'existence de plusieurs interfaces ? L'épaisseur idéale est celle qui permet d'obtenir la meilleure excitation du plasmon. Elle est réalisée en couplage critique lorsque l'interférence entre la lumière directement réfléchie, et la lumière émise par le plasmon ont la même intensité et interfèrent destructivement (ce qui correspond aussi au cas où les pertes radiatives et ohmiques du plasmon sont égales). Ceci résulte en un zéro de réflectivité. Pour une interface air/or, l'épaisseur optimale est de 50 nm à  $\lambda = 600$  nm, comme on peut le voir sur la figure 5.2. L'épaisseur optimale est modifiée avec le dépôt de nanoplaquettes

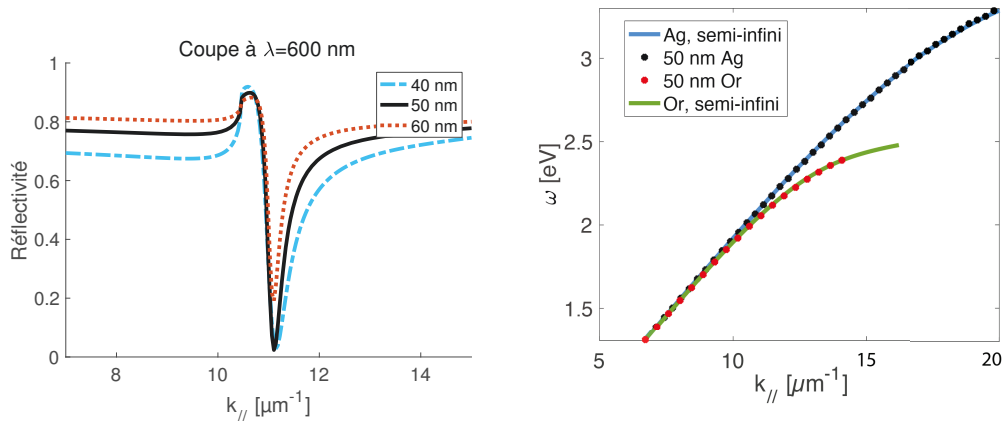
---

2. En supposant  $|\epsilon'_m| \gg |\epsilon''_m|$ , ce qui est le cas pour l'or au dessus de 600 nm.

## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface



**Figure 5.1** – A gauche : Diagramme de dispersion du plasmon pour une interface or/diélectrique selon l'équation 5.2. L'utilisation d'une couche d'or fine déposée sur du verre permet d'exciter le plasmon en décalant le vecteur d'onde parallèle du cône de lumière d'un facteur  $n_{\text{verre}}$ . A droite : schéma d'un échantillon typique constitué d'une couche de diélectrique déposée sur 50 nm d'or, le tout sur du verre. Le plasmon est excité à travers le verre, par l'onde évanescente lors de la réflexion sur l'or. La longueur de décroissance du plasmon, du côté diélectrique, est de l'ordre de quelques centaines de nm, il perçoit donc un milieu effectif composé de la couche de diélectrique et de l'air.



**Figure 5.2** – Coupe angulaire à  $\lambda = 600$  nm, pour le diagramme de dispersion d'une interface or/air pour trois épaisseurs d'or distinctes. L'épaisseur optimale est de 50 nm.

**Figure 5.3** – Diagramme de dispersion pour des milieux semi-infini métal/air dans le cas de l'or et de l'argent. En pointillés les calculs numériques pour une couche de 50 nm de métal.

sur le dessus, mais la modification reste très faible.<sup>3</sup> On utilise donc uniquement des lames recouvertes de 50 nm d'or. Reste à savoir comment est modifiée la relation de dispersion du plasmon lorsqu'on passe d'une couche semi-infinie de métal à une couche de 50 nm. Pour cela, on a tracé sur la figure 5.3 les relations de dispersion analytiques de l'équation (5.2) (en trait plein), et les solutions numériques pour des couches de 50 nm (points) pour l'or et pour l'argent. On s'aperçoit que pour cette épaisseur, la partie réelle du vecteur d'onde n'est quasiment pas modifiée. C'est d'ailleurs pour cela que les minima de la figure 5.2 sont tous trois au même  $k_{\parallel}$ . Cependant, les parties imaginaires des vecteurs d'ondes varient fortement avec l'épaisseur : plus la couche est mince plus les pertes sont élevées et plus le mode est large.

Pour déterminer les minima, on pourra donc utiliser l'équation analytique (5.2) obtenue pour une couche métallique semi-infinie. Néanmoins, cette relation dépend de l'indice du diélectrique déposé vu par le plasmon  $\epsilon_d$ . En utilisant l'indice  $n_d = \sqrt{\epsilon_d}$ , on peut réécrire l'équation de dispersion du plasmon comme

$$\omega = \frac{ck'_x}{n_d} \sqrt{\frac{\epsilon'_m + \epsilon_d}{\epsilon'_m}}. \quad (5.3)$$

Ainsi, la fréquence accessible pour un vecteur d'onde  $k'_x$  donné est inversement proportionnelle à l'indice  $n_d$  de la couche déposée sur l'or. Ceci est très important dans le cas d'une expérience en configuration Kretschmann lorsqu'on voudra exciter le plasmon par une onde plane incidente. En effet, dans cette configuration, pour avoir conservation du moment, il faut donc que le vecteur d'onde parallèle de l'onde incidente  $k_{\parallel\text{inc}}$  à travers le verre soit égal au vecteur d'onde du plasmon  $k'_x$  à savoir :

$$k'_x = k_{\parallel\text{inc}} \quad (5.4)$$

$$\Leftrightarrow \sqrt{\frac{\epsilon'_m \epsilon_d}{\epsilon'_m + \epsilon_d}} \frac{\omega}{c} = n_{\text{verre}} \sin(\theta_{\text{inc}}) \frac{\omega}{c}. \quad (5.5)$$

Plus le vecteur d'onde du plasmon est grand (terme de gauche de l'équation), plus l'angle d'incidence devra être élevé. Ainsi pour obtenir égalité des vecteurs d'onde il faudra un angle vérifiant :

$$\sin(\theta_{\text{inc}}) = \frac{n_d}{n_{\text{verre}}} \sqrt{\frac{\epsilon'_m}{\epsilon'_m + \epsilon_d}}. \quad (5.6)$$

L'angle nécessaire pour avoir égalité des vecteurs d'onde croît avec le rapport des

---

3. De l'ordre de 1-2 nm pour des couches d'indice  $n=1.8$  de quelques dizaines de nm d'épaisseurs déposées sur l'or.

indices  $\frac{n_d}{n_{\text{verre}}}$ . Ce rapport va donc déterminer la fréquence maximale que l'on pourra obtenir expérimentalement (étant donné que l'on est limité à des angles  $\theta_{\text{inc}} < \pi/2$ ). Plus la couche déposée aura un indice élevé, plus le verre utilisé devra être d'indice élevé, ou plus l'angle d'incidence devra être rasant. Enfin, si on considère que  $|\epsilon'_m| \gg |\epsilon_d|$ , on voit qu'il faudra toujours un indice de verre plus élevé que l'indice de la couche déposée pour pouvoir exciter le plasmon :  $n_{\text{verre}} > n_d$ .

On verra par la suite que l'indice du diélectrique dépendra, pour des couches minces, de l'épaisseur déposée. De plus on verra que cette relation limite les épaisseurs de couches de diélectriques que l'on pourra déposer.

### 5.3 Les Nanoplaquettes

Les nanoplaquettes, appelées aussi puits quantiques colloïdaux, sont des particules synthétisées en solution à travers la réaction de précurseurs en Cadmium et Sélénium. Elles ont des dimensions latérales de quelques dizaines de nm et une épaisseur contrôlée à la couche atomique près, cf. figure 5.4. Les premières synthèses contrôlées de nanoplaquettes semiconductrices ont été réalisées par le groupe de Benoît Dubertret à l'ESPCI [Ithurria et al., 2011]. Celles-ci consistent en un cristal de Séléniure de Cadmium de type Zinc-Blende. A la différence des boîtes quantiques et des nanofils, dont les niveaux d'énergie des excitons sont quantifiés respectivement dans trois et deux dimensions, les nanoplaquettes n'ont un confinement que selon l'axe de l'épaisseur. Les nanoplaquettes se comportent donc comme des puits quantiques, en solution, dont l'épaisseur détermine l'énergie de l'exciton et donc la longueur d'onde d'absorption et d'émission. Les procédés de synthèse permettent d'obtenir l'épaisseur désirée à la monocouche près, et ceci pour de grandes quantités de solution. Il est donc possible d'obtenir des lots de nanoplaquettes avec une largeur inhomogène réduite. De plus, les nanoplaquettes ne présentent aucune rugosité dans la direction de confinement, ce qui permet aux excitons d'avoir une surface de cohérence étendue [Naeem et al., 2014] laissant penser que leur dipôle associé est plus important que ceux des BQs [Feldmann et al., 1987; Andreani et al., 1999]. La combinaison d'une force d'oscillateur élevée et d'une largeur inhomogène faible fait des plaquettes d'excellentes candidates pour l'observation du couplage fort.

Il a aussi été démontré que les NPs sont des émetteurs et absorbeurs anisotropes [Scott et al., 2017] dû au fait que le dipôle se situe dans le plan, mais aussi par effet d'antenne parallélépipédique à faible épaisseur [Feng et al., 2018]. Ceci, combiné à des procédés de dépôt selon des orientations précises [Gao, Weidman, et Tisdale, 2017] permettrait

d'obtenir des sources lumineuses ou des photodétecteurs avec de meilleures efficacités que celles obtenues avec des émetteurs isotropes comme les BQs. Cela peut, en outre, permettre d'assurer un couplage maximal avec le champ d'une structure plasmonique en orientant le dipôle de manière déterministe, à différence des BQs colloïdales pour lesquelles le dipôle est orienté aléatoirement [Hoang, Akselrod, et Mikkelsen, 2016].

De plus ces émetteurs présentent aussi une section efficace d'absorption à un [Achtstein *et al.*, 2015] et deux photons très élevée [Scott *et al.*, 2015], et permettent d'obtenir une émission laser à faible seuil [Guzelturk *et al.*, 2014b; She *et al.*, 2015; Yang *et al.*, 2017]. Toutes deux sont des propriétés qui pourraient être intéressantes pour la démonstration de laser à polaritons, après avoir obtenu au préalable du couplage fort.

Concernant plus particulièrement les effets collectifs, deux propriétés supplémentaires sont à noter. Tout d'abord, leur forme particulière permet de former des empilements de NPs uniquement en contrôlant le solvant [Abécassis *et al.*, 2014; Guzelturk *et al.*, 2014a] ou les ligands [Antanovich *et al.*, 2016]. En particulier, Guzelturk *et al.* [2014a] ont montré qu'il est possible de contrôler précisément le nombre de plaquettes de l'empilement en dosant la quantité de solvant polaire rajouté. Ainsi il est possible d'obtenir le cas idéal de deux ou plusieurs émetteurs très proches, avec leur dipôle bien alignés. Ceci, combiné à la faible largeur inhomogène qui a déjà été mentionnée, pourrait permettre l'étude des interactions dipôle-dipôle comme celles proposées aux chapitres précédents.

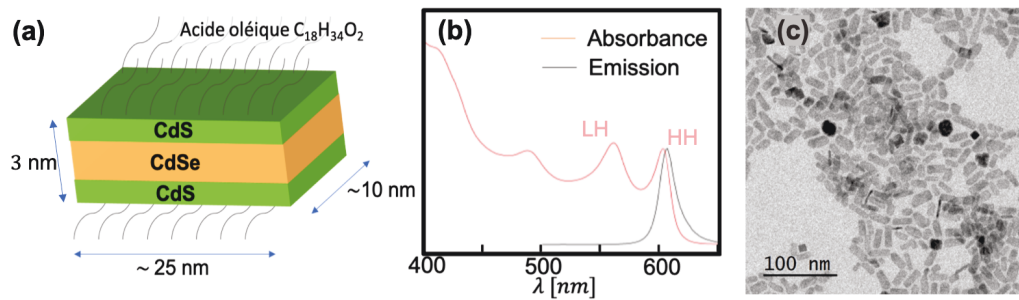
Finalement, le couplage fort a été démontré dans deux études, ayant chacune une architecture différente. Une première étude [Flatten *et al.*, 2016] a montré le couplage d'une couche de NPs d'environ 700 nm d'épaisseur avec un mode d'une cavité Fabry-Pérot. Une deuxième étude a récemment montré le couplage fort avec des plasmons de surface [Winkler *et al.*, 2019], obtenus à partir d'un réseau de nanoantennes [Bellessa *et al.*, 2009]. C'est aussi la première fois qu'une étude s'intéresse au couplage avec des plasmons.

## 5.4 Échantillons

Les nanoplaquettes que l'on utilise sont fabriquées par Sandrine Ithurria à l'ESPCI. La plupart des expériences ont été réalisées avec des plaquettes coeur/coque, avec un cœur formé de 6 monocouches de CdSe et une coque de 2 monocouches de CdS de part et d'autre, comme schématisé sur la figure 5.4(a). La coque permet de protéger l'exciton des défauts de surface et d'augmenter ainsi l'efficacité quantique [Javaux



## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface



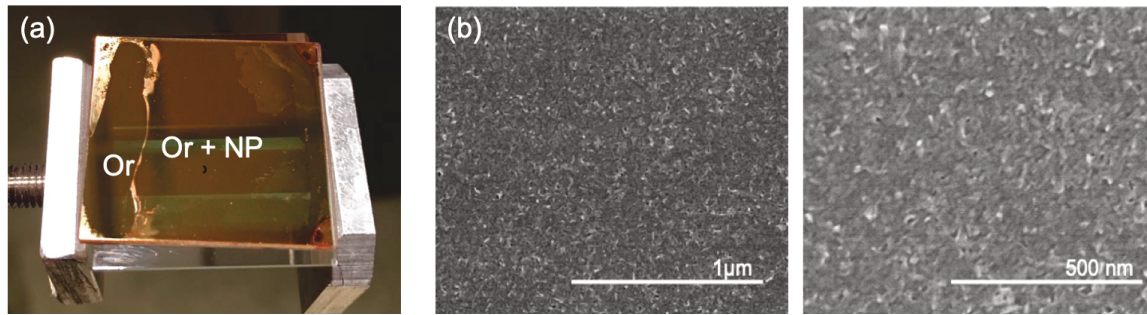
**Figure 5.4** – (a) Schéma des nanoplaquettes cœur/coque en CdSe/CdS utilisées. (b) Absorbance et spectre d'émission des nanoplaquettes en solution dans l'Hexane, avec deux pics d'absorption correspondants aux transitions avec les trous légers (LH) et les trous lourds (HH). (c) Images TEM des nanoplaquettes.

[et al., 2013](#)]. Une image TEM est présentée en figure 5.4(c), où l'on peut en déduire les dimensions latérales des nanoplaquettes, qui sont de l'ordre de 10 nm de largeur, 25 nm de longueur et 3 nm d'épaisseur. Des ligands, formés de ions carboxylates à longues chaînes carbonées, permettent de stabiliser les nanoplaquettes en solution (apolaire). Ici, il s'agit d'ions oléates faisant 2 nm de long. Les spectres d'absorption et d'émission de ces nanoplaquettes dispersées dans de l'hexane sont tracés sur la figure 5.4(b). Les deux pics en absorptions correspondent aux transitions excitoniques faisant intervenir les trous légers (LH), et les trous lourds (HH). La longueur d'onde d'absorption dépend :

- de l'épaisseur du cœur
- de l'épaisseur et matériau de la coque
- des ligands.

L'épaisseur du cœur détermine la dimension de confinement (et donc la taille du puits quantique) ; la coque et les ligands vont jouer sur l'indice extérieur (et donc sur la barrière de potentiel). Un décalage de Stokes de quelques nm résulte en un pic d'émission quasiment à la même longueur d'onde que le pic d'absorption pour le trou lourd.

Les premiers échantillons utilisés sont des lames de microscope en verre (Schott), de dimension  $26 \times 22 \times 1 \text{ mm}^3$ , avec une couche d'or déposée dessus. Comme mentionné précédemment, pour avoir une excitation critique du plasmon, c'est à dire pour obtenir un zéro de réflectivité, il faut que la couche d'or ait une épaisseur de 50 nm. L'épaisseur garantie par Schott est de  $50 \pm 3 \text{ nm}$  pour l'or. Une couche de  $3 \pm 0,5 \text{ nm}$  de chrome entre le verre et l'or sert de couche d'accroche. Deux types de verre sont utilisés pour le substrat : du BK7 et du SF10 d'indice à 600 nm égal à  $n_{\text{BK7}} = 1.51$  et  $n_{\text{SF10}} = 1.73$ .

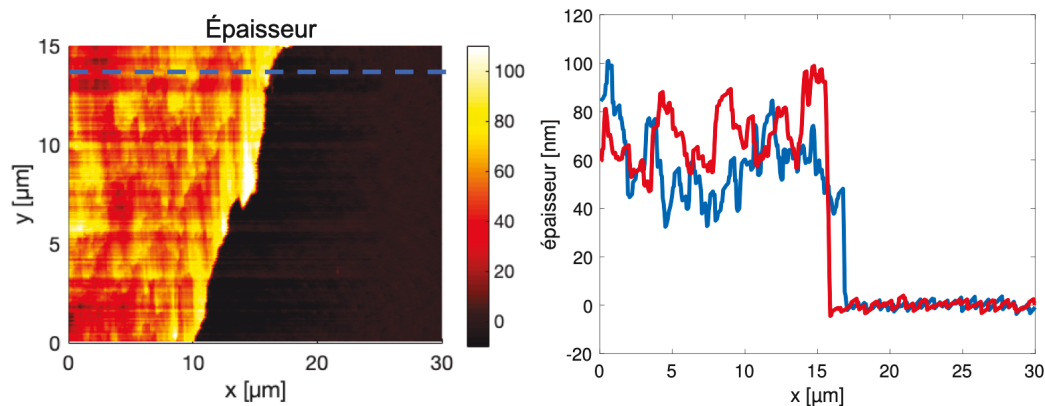


**Figure 5.5** – (a) Photographie de l'échantillon posé sur le prisme. Une couche homogène de nanoplaquettes est visible sur tout l'échantillon sauf sur une bande qui avait été cachée par de la résine optique. Celle-ci a ensuite été dissoute dans l'acétone révélant à nouveau la surface d'or. (b) Images MEB de la surface après dépôt.

Comme le montre l'équation (5.6), plus l'indice du verre est élevé, plus l'accord de vecteur d'onde parallèle sera réalisé avec des angles d'incidences plus proches de la normale. Ou encore, plus on pourra déposer de matière sur l'or pour un même angle donné.

Dans notre cas, ce dépôt correspond à une couche de NPs. Pour obtenir des couches de faible épaisseur et homogènes on utilise une méthode d'enduction centrifuge. Nous avons suivi le protocole suivant. Tout d'abord, les lames d'or sont nettoyées au plasma à oxygène pendant 10 min. Les NPs sont redispersées dans du toluène (VWR HiPerSolv CHROMANORM). Pour obtenir une couche de quelques dizaines de nm il faut une concentration dense optiquement de NPs : on utilise une concentration de  $\sim 5$  mg/mL. La concentration a été mesurée en pesant un volume de nanoplaquettes après évaporation du solvant. La concentration peut aussi être mesurée grâce à une mesure d'absorption en notant la densité optique au niveau du pic du trou lourd. Ensuite,  $120 \mu\text{L}$  de solution sont déposées sur les lames, le liquide devant remplir toute la lame avant le début de la rotation. La vitesse de rotation de la tournette est fixée à 500 tours/min, pendant 30 s, avec une phase d'accélération initiale de qui dure 5 s. On obtient des surfaces homogènes à l'œil, voire figure 5.5 pour une photo de l'échantillon et une image MEB de la surface. Les épaisseurs de nos dépôts ont été mesurées avec un AFM et avec un profilomètre (Dektak3ST, VEECO). Dans les deux cas il est nécessaire d'avoir sur l'échantillon une partie de la surface sans dépôt de plaquettes pour pouvoir mesurer la marche d'épaisseur. La méthode utilisée jusqu'à présent a été de déposer une gouttelette de résine optique sur un côté de l'échantillon avant l'enduction de NPs, pour ensuite la dissoudre dans de l'acétone et ainsi révéler une partie de la surface d'or sans nanoplaquettes déposées dessus. Une photographie

## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface



**Figure 5.6** – Gauche : Carte AFM de l'épaisseur de l'échantillon en nm. Droite : Coupe selon x selon la ligne bleue de l'image de gauche, et en rouge sur une autre image mesurée, non affichée ici.

du type d'échantillon ainsi obtenu est affichée sur la figure 5.5(a). Les mesures de profil avec l'AFM et le profilomètre sont réalisées au niveau de la marche d'épaisseur. L'AFM a une course réduite de 30 μm, il ne permet de mesurer l'épaisseur que près de la frontière entre la zone recouverte de NP et la zone sans NP. Les résultats de la mesure sont affichés sur la figure 5.6. On obtient une épaisseur de NP de 60 nm et 70 nm pour deux échantillons différents avec la même procédure de dépôt. La mesure affiche une rugosité de  $\pm 15$  nm, sur les 15 μm de course parcourus. En ne s'éloignant que de 15 μm du bord marqué par la goutte de résine, il est probable que cette mesure résulte en une valeur d'épaisseur plus élevée que la zone plus au centre de l'échantillon, du fait d'une accumulation de NPs au bord de la résine lors de l'enduction, nous y reviendrons plus tard. Le profilomètre permet de contourner ce problème car il donne accès à une course plus étendue. De plus, la résolution en z de quelques nm suffit. Une mesure sur un échantillon similaire a permis de mesurer une épaisseur de  $44 \pm 10$  nm à 200 μm de la frontière (et 49 nm d'épaisseur à quelques dizaines de μm de distance du bord.) Jusqu'à présent cette méthode n'a été testée que sur deux échantillons. Le nettoyage de la résine à l'acétone n'a pas d'influence visible sur les nanoplaquettes déposées. Cependant il reste à bien quantifier son effet en réalisant des nappes de dispersion avant et après rinçage. Une alternative serait d'utiliser un adhésif au lieu de la résine, qui éviterait de passer par une étape de lavage.

### 5.4.1 Indice effectif vu par le plasmon

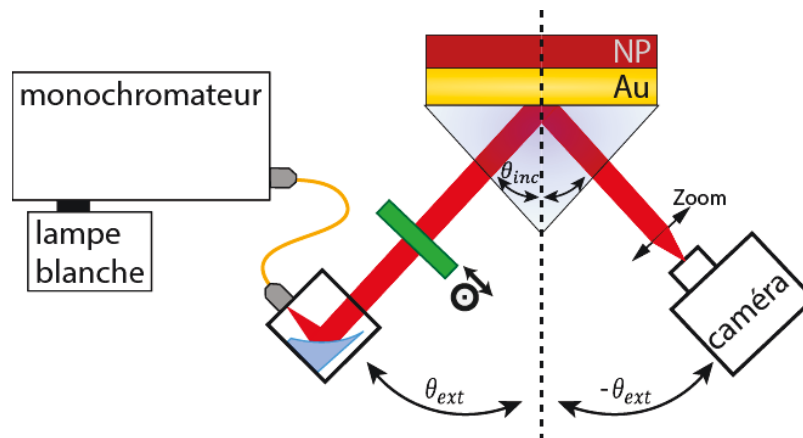
L'épaisseur de la couche de nanoplaquettes est un paramètre critique qui détermine le nombre d'émetteurs en interaction avec le plasmon, mais aussi l'indice optique perçu par le plasmon. Elle va donc jouer sur la relation de dispersion comme indiqué sur l'équation (5.6). Comme on l'avait fait remarquer, l'indice de la couche de nanoplaquettes doit être inférieur à l'indice du verre si l'on veut pouvoir exciter le plasmon. L'indice de la couche de nanoplaquettes peut-être calculée par homogénéisation de type Maxwell-Garnett. L'indice obtenu varie autour de  $n_{\text{NP}} = 1.8$  en fonction de la densité de NPs dans la couche, cf. annexe 5.A. Dans tous les cas cet indice est plus élevé que l'indice du BK7 (1.51), et égal ou supérieur à celui du SF10 (1.72). Il est donc impossible d'exciter le plasmon si la couche de NP est semi-infinie, ou en tout cas plus épaisse que la longueur de pénétration du plasmon, qui est de l'ordre de la centaine de nm ( $\sim \lambda/2n_{\text{NP}}$ ).

Une solution consiste à déposer une couche moins épaisse de NPs ; le plasmon va donc pénétrer le milieu sur une longueur plus grande que la couche de NPs et va ainsi percevoir un indice effectif qui dépend de l'indice des NPs et de l'indice de l'air. C'est ce qui est représenté sur la figure 5.1. C'est pour cette raison que l'on favorise le dépôt par enduction, qui permet d'obtenir des couches peu épaisses. Une approche perturbative permet de trouver une expression analytique de l'indice effectif en fonction de l'épaisseur déposée [Homola, 2006]. Nous nous contenterons des résultats numériques exacts avec les épaisseurs de nanoplaquettes mesurées ou ajustées numériquement.

## 5.5 Expérience et résultats

Les premières expériences de couplage fort ont été réalisées sur le banc de l'équipe de Julien Moreau dans le groupe de Biophotonique. Ce montage, dont le schéma est présenté sur la figure 5.7, permet de réaliser des mesures de réflectivité en configuration Kretschmann. L'échantillon de nanoplaquettes sur film d'or est placé côté substrat sur un prisme à l'aide d'un liquide d'indice approprié. Une lumière blanche filtrée par un monochromateur sur une plage de 10 nm, est collimatée par un collimateur en réflexion (et donc achromatique) qui vient éclairer l'échantillon côté or, traversant le prisme et le substrat. L'angle d'incidence est contrôlé par un bras motorisé. Une caméra permet d'imager la surface inférieure de l'échantillon (interface or/verre). Cette caméra est aussi placée sur un bras mécanique qui forme un angle opposé à l'angle d'excitation

## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

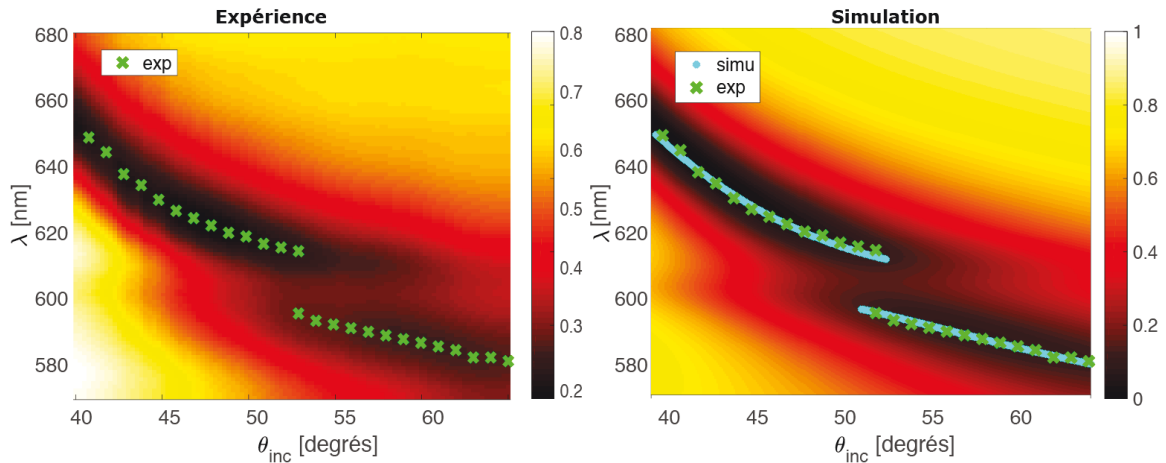


**Figure 5.7** – Principe de l'expérience montée par l'équipe de Julien Moreau. Un monochromateur (Horiba iHR320) filtre la lumière d'une source blanche sur une fenêtre de 10 nm et est injectée dans un fibre multimode (Thorlabs 400  $\mu\text{m}$  de coeur, NA=0.39). La lumière est collimatée (Thorlabs LPVIS100) en sortie de fibre par un collimateur achromatique à miroir parabolique (Thorlabs RC12FC-P01), puis polarisée par un polariseur linéaire monté sur une rotation motorisée avant d'éclairer l'interface d'or en contact avec le prisme. La fraction de lumière réfléchiée est focalisée par un zoom optique sur une caméra (Hamamatsu C11440). La caméra et le bras d'excitation sont placées sur des bras motorisés (Newport RV12088) permettant de contrôler leur angle  $\theta_{ext}$  par rapport à la normale du faisceau incident. Les diagrammes de dispersion sont obtenus en scannant la longueur d'onde et l'angle d'incidence  $\theta_{inc}$ .

par rapport à la normale de la surface or/verre. L'angle d'excitation et de collection est modifié par un contrôleur avec des pas minimaux de 0,1 degré.

Pour tracer les diagrammes de dispersion, une image en excitation TM et en excitation TE est enregistrée pour chaque longueur d'onde et chaque angle. Les plasmons ne sont excités que par une excitation TM, les images TE sont donc prises en tant que référence. On trace l'intensité de images TM/TE en intégrant l'image sur une zone d'intérêt de la surface de l'échantillon.

La première mesure réalisée est celle du diagramme de dispersion de l'or plat (avant dépôt). Comme discuté précédemment, la position du minimum de réflexion ne dépend pas de l'épaisseur, elle est utilisée pour régler le zéro angulaire du banc. L'épaisseur de l'or et du chrome sont aussi déterminées grâce à cette mesure par un ajustement numérique. L'épaisseur de l'or va être déterminée par la valeur du minimum de réflexion, l'épaisseur de chrome par la valeur du maximum de réflectivité. Toutes les simulations numériques sont réalisées à partir d'un programme développé par Hugonin et Lalanne [2012] qui permet de calculer les coefficients de réflexion et transmission



**Figure 5.8** – Nappes de réflectivités expérimentale (à gauche) et simulées (à droite). La simulation a été réalisée à partir des paramètres ajustés numériquement à partir des valeurs des minima, affichées en vert pour les mesures expérimentales et en turquoise pour la simulation. Les paramètres ajustés sont l'épaisseur, la permittivité non résonante  $\epsilon_b$  et la force d'oscillateur de la couche de nanoplaquettes dont la permittivité est modélisée par l'équation (5.7).

pour un empilement de couches à partir des équations de Maxwell. Pour l'or et le chrome, l'indice est connu et on utilise celui de la référence [Johnson et Christy, 1972] qui décrit bien les mesures, comme confirmé par des mesures d'ellipsométrie réalisée dans l'équipe de Julien Moreau.

On peut ensuite procéder au dépôt de la couche de NP sur cet échantillon et mesurer son diagramme de dispersion. L'échantillon avec le meilleur anticroisement obtenu jusqu'à présent est affiché sur la figure 5.8. On voit apparaître deux branches de minima de réflexion, au lieu d'une seule branche provenant du plasmon isolé. Ces deux branches correspondent aux deux nouveaux modes du système, c'est-à-dire à des modes hybrides plasmon/excitons, appelés aussi des exciton-polaritons, ou encore plexcitons. L'anticroisement apparaît à la longueur d'onde du premier pic d'absorption des nanoplaquettes  $\lambda_{HH} = 604$  nm. Cet anticroisement en réflexion est un premier indice de couplage fort entre les plaquettes et le plasmon de surface. Cependant il n'est pas possible de conclure à l'existence d'un couplage fort à partir de cette figure pour deux raisons. Tout d'abord, les grandeurs représentées sur les axes ne permettent pas de visualiser les modes plasmoniques correctement. En effet, pour une coupe verticale (à angle d'incidence constant), lorsqu'on fait varier la longueur d'onde, le vecteur d'onde du plasmon n'est pas constant. On ne regarde donc pas un même mode plasmonique sur cette coupe. Pour cela, il faut tracer le diagramme en fonction de

## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

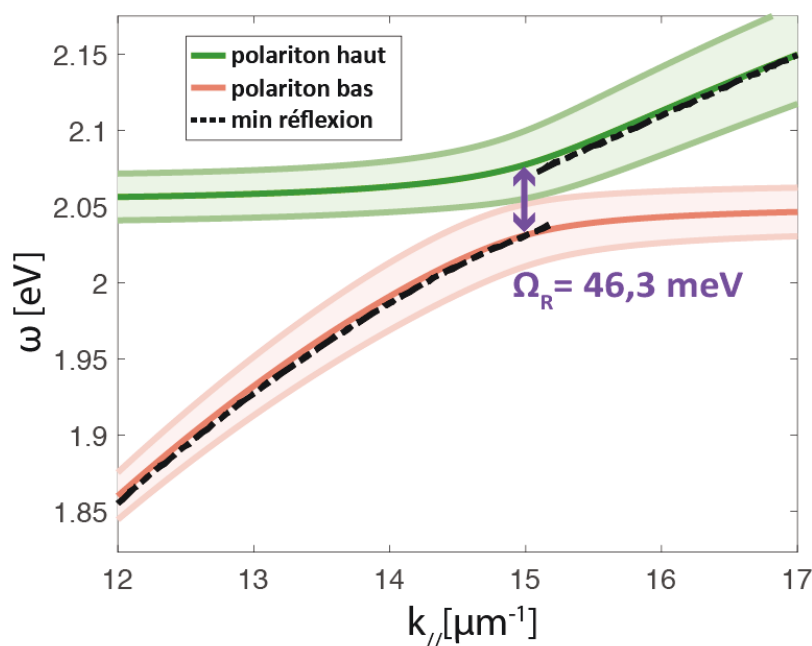
$k_{\parallel} = \frac{2\pi n_{\text{verre}}}{\lambda} \sin(\theta_{\text{inc}})$ . On utilisera aussi la fréquence de l'onde incidente en ordonnée plutôt que la longueur d'onde pour avoir directement accès à l'énergie du mode. Deuxièmement les minima de réflectivité et leur largeurs ne permettent pas de déduire directement les modes du systèmes. Il se peut en effet que ces minima résultent d'effets d'interférences, par exemple entre la lumière directement réfléchi, et la lumière émise par le mode. Afin de déterminer les modes du système tout en s'affranchissant de ces difficultés, nous réalisons une mesure de l'indice effectif de la couche à partir des mesures de réflectivité. Nous remontons ensuite numériquement aux modes du système. C'est ce qui est présenté dans le paragraphe suivant.

## 5.6 Simulation

Nous allons ici remonter à l'indice effectif de la couche de nanoplaquettes à partir des mesures de réflectivité. La permittivité de la couche déposée est modélisée par un indice de type Lorentz :

$$\epsilon = \epsilon_b + \frac{f}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma_{\text{pl}}\omega}, \quad (5.7)$$

avec une permittivité non résonante réelle  $\epsilon_b$  et une résonance lorentzienne centrée sur  $\omega_0 = \frac{2c\pi n_{\text{verre}}}{\lambda_{\text{HH}}}$  et de largeur  $\gamma_{\text{pl}}$ . Cette largeur est déterminée auparavant par la courbe d'absorption des NPs, après dépôt sur l'or. La force d'oscillateur de la couche  $f$  est proportionnelle à la densité d'oscillateurs à la fréquence  $\omega_0$  et détermine le couplage avec le plasmon. Elle va caractériser l'ouverture du gap en énergie entre les deux branches plexcitoniques. L'épaisseur de NPs n'a pas pu être mesurée sur cet échantillon, les paramètres à ajuster sont donc : la force d'oscillateur  $f$ , la permittivité non résonante  $\epsilon_b$  et l'épaisseur de la couche de NPs. Même si les effets de ces paramètres sont liés, leur modification engendre un déplacement différent des minima de réflexion pour chacun d'eux, et il est donc possible de converger uniquement à partir des minima vers une série de valeurs qui ajustent bien les données expérimentales. Sur la figure 5.8 on a tracé la nappe de réflectivité simulée avec les paramètres ajustés. Les paramètres ajustés obtenus sont :  $\{h_{\text{NP}} = 38,8 \text{ nm}; \epsilon_b = 1.804^2; f = 0,021 \text{ eV}^2\}$ . L'épaisseur obtenue est compatible avec les mesures d'épaisseur présentées précédemment, en remarquant que l'épaisseur de plaquettes ajustée, pour une région au centre de l'échantillon, est plus faible que celle mesurée au bord de la goutte de résine. Ceci semble confirmer l'hypothèse d'accumulation de matière due à la marche provoquée par la résine, cf. paragraphe 5.4. De plus elle est proche de la valeur obtenue par profilométrie (44 nm) qui avait été réalisée sur un autre échantillon. La méthode de dépôt semble



**Figure 5.9** – Modes complexes du système représentant les polaritons haut et bas, les traits centraux correspondent à la partie réelle et la largeur verticale des bandes correspond à la partie imaginaire. L’anticroisement permet d’obtenir la valeur de la fréquence Rabi qui est ici égale à  $\Omega_R = 46,3 \text{ meV}$ . On a aussi indiqué en pointillés noirs les minima de réflexion simulés (traits turquoise de la figure 5.8 droite).

donc assez reproductible. Quant à la permittivité non résonante  $\epsilon_b$ , on obtient une valeur légèrement moins importante que celle d’une étude précédente sur ce genre d’échantillons [Winkler et al., 2019], égale à  $1.83^2$ .

Les valeurs des épaisseurs et indices obtenus numériquement permettent ensuite de chercher les modes de ce système de couches. Pour cela, le programme cherche les pôles complexes du facteur de transmission, dont la partie réelle et imaginaire correspondent respectivement aux fréquences et aux largeurs des modes propres. Pour ce calcul, l’indice de l’or est modélisé par un indice de Drude-Lorentz<sup>4</sup> ajusté à partir de [Olmon et al., 2012]. Le diagramme de dispersion des modes ainsi obtenus est tracé sur la figure 5.9. Les parties réelles et imaginaires des fréquences complexes sont respectivement les traits centraux et les largeurs verticales des bandes colorées. On trace aussi en pointillés noirs les minima de la simulation de l’expérience de réflectivité<sup>5</sup>. Tout d’abord on peut remarquer que les minima de réflectivité et la partie réelle des modes propres sont assez proches mais pas identiques, ce qui justifie

4. les indices doivent avoir des expressions analytiques pour la recherche de pôles.

5. avec l’indice de l’or du modèle Lorentz-Drude



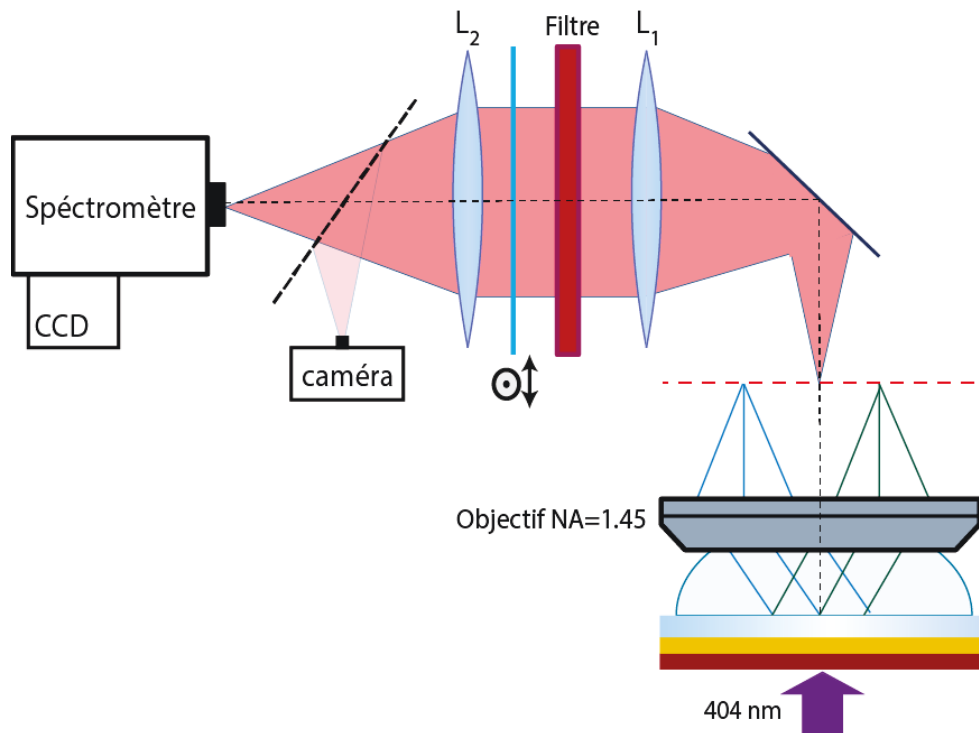
## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

l'approche adoptée ici de recherche de modes propres. Il y a notamment un décalage de 5 meV sur la branche du bas, qui aurait amené à une surestimation de la fréquence de Rabi calculée à partir des minima de réflexion. Deuxièmement, on voit que les deux modes propres du système s'anticroisent à la fréquence d'absorption du trou lourd. On peut à présent calculer la fréquence de Rabi à partir de l'écart en énergie le plus faible : on obtient  $\Omega_R = 46,3 \text{ meV}$ . On peut aussi voir que les deux modes sont distincts sur tout le spectre, à savoir que l'écart en énergie entre les deux modes est toujours plus grand que la demi-somme des largeurs. Cependant cette relation est à peine vérifiée au point d'anticroisement : on peut donc parler de couplage fort mais le système est proche du régime intermédiaire entre couplage fort et faible. Les pistes qui permettront d'améliorer le couplage entre les NPs et le plasmon seront détaillées plus loin.

### 5.6.1 Fluorescence

La recherche de modes complexes du système à partir des données ajustées permet de mieux rendre compte de la réponse du système que par la simple utilisation des données expérimentales de réflectivité. Cependant cette méthode ne nous permet pas d'étudier les processus d'émission de lumière du système. L'objectif du travail est d'étudier l'émission de lumière en régime de couplage fort. Pour cela, il faut réaliser une expérience de luminescence. Nous avons donc décidé de concevoir une nouvelle expérience de photoluminescence pendant ma thèse. Les processus d'émission d'assemblées d'émetteurs sont encore mal compris [Greffet *et al.*, 2018]. Notamment pour les systèmes en couplage fort avec un mode optique ou plasmonique [George *et al.*, 2015], où les mesures en diffraction et en luminescence sont souvent très différentes. En effet il est courant d'obtenir des forces de Rabi bien moins importantes en luminescence [Wersäll *et al.*, 2017], et surtout une suppression de l'émission de lumière par le polariton de la branche supérieure [Lidzey *et al.*, 1999]. L'expérience de Winkler *et al.* [2019] semble montrer que ces deux particularités de l'émission ont lieu aussi avec les systèmes de nanoplaquettes. Il est donc intéressant de pouvoir mesurer la photoluminescence de notre système.

La figure 5.10 présente le schéma de notre montage. C'est une expérience de microscopie de plan de Fourier utilisant un objectif à huile d'immersion. Son plan focal arrière est projeté sur la fente d'entrée d'un spectromètre qui va disperser la lumière. Une matrice CCD enregistre le spectre de la lumière injectée par la fente d'entrée. Cette fente d'entrée sélectionne une section de l'image du plan de Fourier,



**Figure 5.10** – Montage de microscopie du plan de Fourier. L'échantillon est excité côté NPs de façon non résonante par une lampe UV (Thorlabs) à 404 nm. La lumière de fluorescence est collectée par un objectif à immersion dont le plan focal arrière est projeté sur la fente d'entrée d'un spectromètre (Andor Shamrock 750), qui sélectionne les vecteurs d'ondes selon une direction donnée. Le signal est dispersé en fréquence et on obtient le diagramme de dispersion sur la caméra CCD (Andor idus). La lumière est filtrée pour retirer la pompe, et polarisée pour choisir la fluorescence TM ou TE (polarisation parallèle ou perpendiculaire à la fente).

pour ainsi obtenir un diagramme de dispersion. Les nanoplaquettes sont excitées de façon non-résonante par une lumière UV (Thorlabs) à 404 nm. Pour ces mesures, l'épaisseur de la lame de verre doit être adaptée à la distance de travail de l'objectif. On utilise un objectif Olympus d'ouverture numérique égale à 1,45 et distance de travail de 150  $\mu\text{m}$ . De nouveaux échantillons ont donc été préparés, en utilisant des lames de verre de cette épaisseur. Une couche de 50 nm d'or a été déposée à Thalès par évaporation, avec une couche d'accroche en titane de 3 nm. Le dépôt de nanoplaquettes est réalisé selon la même procédure que pour les précédents échantillons. Les expériences sont toujours en cours, donc aucun résultat de photoluminescence ne pourra être présenté ici.

## 5.7 Discussion

### 5.7.1 Comment augmenter le couplage ?

Comme mentionné, la valeur de la fréquence de Rabi obtenue dans cette étude situe le système à la frontière entre le couplage fort et le régime intermédiaire. Pour des systèmes d'assemblées d'émetteurs, la fréquence de Rabi dépend de nombreux paramètres dont notamment la densité d'émetteurs, leur position et la direction des dipôles. Notamment dans le cas du couplage à des plasmons ou le champ est localisé et varie fortement dans l'espace.

Deux études semblables à la nôtre permettent de mettre en perspective cette valeur. La première est une étude de BQs colloïdales sur de l'argent en configuration Krestchmann [Gómez *et al.*, 2010]. Les auteurs ont obtenu un couplage de 112 meV avec une épaisseur de seulement 25 nm. Cependant la mesure de  $\Omega_R$  a été réalisée sur un diagramme en  $\lambda/\theta_{inc}$  qui, comme on l'a dit, résulte en une surestimation du couplage allant jusqu'à un facteur 2 [Törma *et Barnes*, 2015]. La deuxième étude est l'expérience de Winkler *et al.* [2019], réalisée avec un système très semblable au nôtre. Les auteurs obtiennent un couplage maximal avec le trou lourd de 140 meV, pour une couche de 275 nm d'épaisseur. Pour une épaisseur de 32 nm, semblable à la nôtre, ils obtiennent une fréquence de Rabi de 92 meV. Cette valeur est égale au double de celle obtenue dans notre système. Deux raisons peuvent expliquer les grandes valeurs de couplage obtenues sur ces deux systèmes. Tout d'abord, le métal utilisé est de l'argent, dont les plasmons de surface ont une longueur de propagation et de pénétration plus importante. Un même plasmon est donc en interaction avec un plus grand nombre  $N$  de plaquettes ; le couplage étant proportionnel à  $\sqrt{N}$ , la fréquence de Rabi va être plus élevée. Pour vérifier cela, on a effectué la même recherche de modes que celle tracée sur la figure 5.9, mais en utilisant l'argent à la place de l'or. On obtient une courbe similaire mais avec un anticroisement plus prononcé :  $\Omega_R = 56$  meV, contre 46,3 meV obtenu avec l'or. Une deuxième raison qui va dans le même sens est l'utilisation de milieux plus denses. En effet tous deux utilisent des émetteurs sans coques. On peut donc obtenir une densité plus élevée, et encore une fois avoir un plus grand nombre d'émetteurs couplés au plasmon. Enfin, l'expérience sur les BQs a été réalisée avec des ligands plus petits, augmentant de la même façon la densité d'émetteurs. Ainsi, la fréquence de Rabi dépend fortement des conditions expérimentales, à savoir du type de NPs utilisées, du dépôt et du métal. Pour savoir si l'on peut augmenter facilement la fréquence de Rabi dans notre système, il est intéressant d'estimer le moment dipolaire

de transition d'une NP unique  $\mu$ . Cela est réalisé en annexe 5.B, à partir de la valeur de Rabi obtenue ici, et de la densité de NPs dans la couche déposée. On obtient des valeurs quasi-identiques à l'étude de [Winkler et al. \[2019\]](#) :  $\mu \sim 20 \times 10^{-29} \text{Cm} = 60\text{D}$ . Ce qui laisse penser qu'il est possible d'obtenir des anticroisements plus importants dans notre système.

Pour cela, deux paramètres sont à améliorer :

- Tout d'abord, l'usage de l'argent qui permet une augmentation directe de la force d'interaction. L'argent permet de plus d'élargir la gamme de longueur d'onde disponible, on pourrait donc utiliser des NPs moins épaisses, émettant entre 400 nm et 600 nm.
- Deuxièmement, la densité du dépôt doit être augmentée. On peut pour cela utiliser des NPs sans coque, mais au risque de diminuer leur propriété d'émission, ou sinon utiliser des ligands plus courts. Le groupe de Sandrine Ithurria est parvenu à synthétiser des NPs avec des ligands quasi mono-atomiques faits par exemple d'ions bromures. Ceci permet donc de se débarrasser des 2 nm d'épaisseur de ligands en octadécylamine tout autour des NPs tels qu'on les a à présent, et de réduire de deux tiers le volume d'une NP.

### 5.7.2 Effets collectifs avec peu d'émetteurs

Mis à part leur capacité à se coupler fortement à des structures résonantes, telle que démontré dans ce chapitre, les nanoplaquettes sont un candidat idéal pour l'étude des interactions entre émetteurs. Il existe trois principales raisons pour cela :

1. Contrairement aux BQs colloïdales, leur fréquence est précisément contrôlée, et donc leur largeur inhomogène est faible [[Tessier et al., 2012](#)].
2. Leur forme particulière permet aux NPs de s'autoassembler. En effet, il a été montré qu'en rajoutant un solvant polaire de manière contrôlée dans une solution de nanoplaquettes, il est possible d'induire un assemblage des NPs face contre face [[Abécassis et al., 2014](#)]. Notamment, il est possible de contrôler le nombre de NPs par assemblage, en fonction du volume de solvant polaire injecté [Guzelturk et al. \[2014b\]](#).
3. L'absence de défauts, et la grande surface surface de cohérence de l'exciton permettent d'obtenir des forces d'oscillateurs élevées [[Andreani et al., 1999](#); [Naeem et al., 2014](#)].

Ainsi, non seulement il est possible d'obtenir des assemblages de plaquettes très

proches ( $\sim 4$  nm de distance inter-plaquettes pour des empilements avec des ligands usuels) avec leur dipôles bien alignés, mais en plus leur fréquence propre est similaire (différence de fréquence inhomogène de l'ordre du meV pour des plaquettes sans coque [Tessier *et al.*, 2012]). Ce système est donc idéal pour étudier les interactions dipôle-dipôle telles que celles qui ont été utilisées dans les modèles théoriques des chapitres précédents. De plus, étant donné que l'interaction dipôle-dipôle s'écrit comme le carré du moment dipolaire, la force d'oscillateur géante de ces émetteurs permettrait d'obtenir des interaction intenses. Par exemple, en prenant un taux d'émission radiatif  $\gamma_{\text{rad}} = 10 \mu\text{eV}$ <sup>6</sup>, et une distance de 4 nm, on obtient des forces d'interaction dipôle-dipôle de l'ordre de 10 meV ! Ce qui correspond à plus de 2,5 nm de décalage en longueur d'onde à 500 nm. Il apparaît donc possible d'obtenir des interactions supérieures aux éventuels désaccords fréquentiels, et aux déphasages purs. Pour ce dernier point il faudra bien sûr étudier le système à basse température. Les mesures qui se prêtent bien pour cette étude sont des mesures de réduction du temps de vie et de statistiques de la lumière émise [Kim *et al.*, 2018].

### 5.8 Résumé

Le couplage fort d'émetteurs avec des résonances plasmoniques se manifeste par une émission cohérente de lumière. Un des principaux intérêts est d'obtenir des sources de lumière directives et polarisées. Dans ce chapitre on a démontré le couplage fort entre un plasmon de surface et une nouvelle classe d'émetteurs colloïdaux, les nanoplaquettes. Ces émetteurs en Sélénure de Cadmium ont une forme de parallépipède rectangle aplati. Contrairement aux cas des boîtes quantiques, les excitons dans les nanoplaquettes ne sont confinés que selon l'épaisseur, qui est de l'ordre de quelques nanomètres, et qui est contrôlée à la monocouche atomique près. La longueur d'émission est donc précisément définie, ce qui permet d'obtenir de faibles largeurs inhomogènes, et donc une pureté spectrale bien meilleure que pour les boîtes quantiques. Ces émetteurs sont fabriqués par voie chimique en solution, ce qui permet de les déposer facilement sur une surface. Nous avons utilisé l'enduction centrifuge pour déposer une couche de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur sur une couche mince d'or. Nous avons mesuré le diagramme de dispersion en réflexion, qui montre deux branches de résonance qui s'anticroisent. Ceci nous a permis de remonter à l'indice effectif de la couche de nanoplaquettes, pour ensuite démontrer l'existence de couplage fort, à

---

6. Donc un moment dipolaire moins de dix fois supérieur à celui d'une BQ en InGaAS épitaxiée.

travers une recherche numérique des modes du système, entre le mode superradiant des nanoplaquettes et le plasmon de surface. Ces résultats sont une première étape dans le contrôle de l'émission de ces nanoparticules. J'ai pour cela monté un banc expérimental de microscopie du plan de Fourier qui permettra d'étudier les diagrammes de dispersion en photoluminescence. La suite du projet comprend la fabrication d'échantillons avec des réseaux métalliques permettant d'émettre de façon efficace, directive et polarisée.



# Annexes

## 5.A Indice effectif de la couche de nanoplaquettes

Pour calculer l'indice effectif de la couche de nanoplaquettes il est possible d'appliquer une extension au modèle d'homogénéisation de Maxwell-Garnett. Ce dernier consiste à considérer une assemblée peu compacte d'inclusions dans un milieu hôte de permittivité  $\epsilon$ , et à calculer la permittivité de l'ensemble comme étant une couche homogène. Dans le cas des plaquettes, il faut faire attention aux effets d'anisotropie dus à leur géométrie particulière. Pour obtenir une expression analytique, on modélise le milieu comme une assemblée d'ellipsoïdes de permittivité  $\epsilon_{NP}$  de fraction volumique  $f_v$ . Celles-ci sont orientées aléatoirement, on cherche donc une permittivité isotrope. L'expression de la permittivité effective dans ce cas est donnée par [Sihvola et Kong \[1988\]](#) :

$$\epsilon_{eff} = \epsilon + \frac{\sum_{i=1}^3 \frac{f\epsilon(\epsilon_{NP}-\epsilon)}{[\epsilon+L_i(\epsilon_{NP}-\epsilon)]}}{1 - \sum_{i=1}^3 \frac{fL_i(\epsilon_{NP}-\epsilon)}{3[\epsilon+L_i(\epsilon_{NP}-\epsilon)]}}. \quad (5.8)$$

Les coefficient  $L_i$  sont appelés les facteurs de dépolariation et leur expression est donnée dans [\[Bohren et Huffman, 1983\]](#), et dépend uniquement des valeurs des demi-axes de l'ellipsoïde. Les images TEM permettent d'obtenir une estimation des dimensions latérales des NPs qui sont environ égales à  $10 \times 25 \text{ nm}^2$ . L'épaisseur est contrôlée à la monocouche près et consiste en 4 monocouches de CdSe ayant chacune une épaisseur de 0.30 nm [\[Li et Peng, 2011\]](#), et 4,5 monocouches de CdS ayant chacune une épaisseur de 0.35 nm. La demi-couche en plus provenant d'une terminaison en Cadmium sur les deux faces.

Le milieu hôte consiste en un mélange d'air, et de ligands qui sont soit accrochées tout autour des NPs, soit en surplus dans la solution. Ceux-ci sont des octadecylamines (OA), de longueur maximale de 2 nm, et dont l'indice est égal à  $\sqrt{\epsilon_{OA}} = n_{OA} = 1.46$  [\[Williams, 2013\]](#). En première approximation on prend un indice moyen air/OA égal à  $\epsilon = \frac{\epsilon_{air} + \epsilon_{OA}}{2} = 1.6$ . La permittivité d'une NP est prise aussi comme une moyenne des permittivité du CdSe et du CdS massif à 600 nm :  $\epsilon_{CdSe} = 6.6 + 1.9i$  et  $\epsilon_{CdS} = 6.7 + 2.1i$ . On prend donc  $\epsilon_{NP} = 6.7 + 2i$ .

Avec ces valeurs il est possible de calculer la permittivité effective du milieu homogénéisé de nanoplaquettes en fonction de la fraction volumique. Pour obtenir un



## 5 Couplage fort entre nanoplaquettes et plasmons de surface

indice égal à celui obtenu par ajustement des données expérimentales ,  $n = \sqrt{\epsilon_b} = 1.8$ , il faut que la fraction volumique soit égale à

$$f_v = 17\% . \quad (5.9)$$

Cette fraction volumique reste assez faible pour valider l'utilisation de Maxwell-Garnett et est consistante avec le choix d'un milieu hôte à moitié rempli de ligands (ceux-ci occupant environ deux fois plus d'espace que les NPs).

### 5.B Moment dipolaire d'une nanoplaquette

Grâce à la valeur de la fraction volumique des NPs dans la couche déposée, il est possible d'estimer la valeur du dipôle  $\mu$  d'une NP. Dans une vision microscopique, la fréquence de Rabi s'écrit pour N dipôles couplés à un même mode :

$$\hbar\Omega_R = \sqrt{N}\mu\sqrt{\frac{2\hbar\omega}{V\epsilon_0\epsilon_{eff}}} \quad (5.10)$$

où  $\epsilon_{eff}$  désigne la permittivité effective réelle de la couche homogénéisée, et  $V$  le volume du mode interagissant avec les plaquettes. La couplage de Rabi dépend donc du rapport  $N/V = f_v/v$ , avec  $f_v$  la fraction volumique et  $v$  le volume d'une NP. Cette relation est vraie uniquement dans l'hypothèse où la couche de NPs est plus épaisse que la longueur de pénétration du plasmon dans le diélectrique. Ceci n'est pas le cas dans notre système, où la couche déposée de plaquettes est assez fine. Il faut donc estimer la fraction du champ du plasmon qui est en interaction avec les nanoplaquettes. Pour cela, il faut calculer la longueur de pénétration du plasmon dans une couche semi-infinie et la comparer à l'épaisseur de notre couche. La composante verticale du vecteur d'onde, dans la couche diélectrique, dans l'hypothèse de deux milieux semi-infinis or et couche homogénéisée de NPs s'écrit :

$$k_{NP,z} = \frac{\omega}{c}\sqrt{\frac{\epsilon_{NP}^2}{\epsilon_m' + \epsilon_{NP}}}\left[1 - i\frac{\epsilon_m''}{2(\epsilon_m' + \epsilon_{NP})}\right] . \quad (5.11)$$

On obtient dans ce cas une longueur de pénétration du plasmon dans la couche de NPs égale à :

$$\frac{1}{2\text{Im}\{k_{NP,z}\}} = 62\text{ nm} . \quad (5.12)$$

## 5.B Moment dipolaire d'une nanoplaquette

Ainsi, la fraction d'énergie du plasmon interagissant avec la couche de NP d'épaisseur 38,8 nm est :

$$\frac{\int_0^{38.8} e^{-x/62} dx}{\int_0^{\infty} e^{-x/62} dx} = 47\% . \quad (5.13)$$

Il faut donc normaliser le volume total de l'équation (5.10) par ce pourcentage. On obtient finalement :

$$\hbar\Omega_R = \frac{1}{2}\mu\sqrt{\frac{2\hbar\omega}{\epsilon_0\epsilon_{eff}} \frac{0,47f_v}{v}} , \quad (5.14)$$

le facteur 1/2 provenant de l'orientation aléatoire des plaquettes, qui réduit le couplage avec le champ du plasmon orienté principalement selon z. En effet, les nanoplaquettes sont orientées aléatoirement après dépôt par enduction centrifuge, et uniquement l'orientation verticale se couple efficacement au plasmon, les plaquettes déposées horizontalement n'étant quasiment pas couplées. En utilisant la fréquence de Rabi mesurée  $\Omega_R = 46,3$  meV, on peut finalement en déduire le moment dipolaire d'une NP. On obtient

$$\mu \sim 3 \times 10^{-28} \text{ Cm} = 90 \text{ D} . \quad (5.15)$$

Cette valeur est très similaire à celles obtenues précédemment, à savoir  $\mu = 2 \times 10^{-28}$  Cm dans l'expérience de couplage fort avec des plasmon [Winkler et al., 2019] et un ordre de grandeur plus importante que la valeur obtenue dans une expérience de spectroscopie de Stark,  $\mu = 3 \times 10^{-29}$  Cm [Scott et al., 2016].



# Bilan et perspectives

## Bilan de la thèse

L'émission de lumière par un système atomique est un processus complexe qui dépend, d'une part, des interactions entre émetteurs, et d'autre part, de l'environnement électromagnétique dans lequel il est placé. La compréhension et l'utilisation de ces effets est nécessaire en vue d'obtenir des sources de lumière de nouvelle génération, que ce soit pour une application dans le domaine de l'information quantique, ou pour des dispositifs classiques. L'objectif de cette thèse a été d'explorer la contribution de chacun de ces effets, à savoir les effets collectifs et les effets dus au couplage à un résonateur, lorsqu'ils ont lieu simultanément.

Le premier système auquel je me suis intéressé est celui d'émetteurs couplés à un même mode d'une cavité Fabry-Pérot. Ces systèmes permettent d'obtenir d'excellentes interfaces lumière-matière au niveau du photon unique. J'ai montré que le passage du cas usuel d'un seul émetteur à celui de deux émetteurs permet d'obtenir une modulation du comportement du système. En effet, lorsque les deux émetteurs sont fortement couplés entre eux par interaction dipôle-dipôle, ils forment deux nouveaux états collectifs, un état sous-radiant et un état superradiant. J'ai montré que chacun de ces états est décrit comme un émetteur unique effectif, dont le dipôle dépend de la différence de fréquence entre les deux émetteurs, qui peut être contrôlée en appliquant un champ électrique externe. Ce degré de liberté supplémentaire permet donc d'obtenir le cas idéal d'un dipôle modulable, efficacement couplé à une cavité.

Il devient alors possible de fabriquer des sources de photons uniques non seulement efficaces et brillantes, mais aussi de bande passante et de temps d'émission modulables sur plusieurs ordres de grandeurs. En modifiant le champ électrique de façon dynamique, il est possible d'obtenir des qubits temporels ou même une mise en forme d'impulsion qui peut être appliquée à la métrologie quantique ou à l'émission de photons en exponentielle inversée. De plus grâce au mode sous-radiant, il devient aussi possible pour ces nouvelles sources de stocker des photons uniques incidents à large bande. Ces systèmes sont donc idéals pour faire la jonction entre différentes plateformes quantiques, grâce à leur capacité d'émettre, stocker, et modifier des photons uniques de façon adaptée.

J'ai ensuite étudié un cas de figure où la description des états collectifs des deux émetteurs, comme étant des dipôles effectifs en cavité, n'est plus valable. En effet, lorsque les deux émetteurs sont mis en interaction avec un mode antisymétrique, confiné dans l'espace, leur émission dans ce mode est très différente de l'émission dans le milieu extérieur. Pour obtenir cela nous avons utilisé la résonance d'une antenne plasmonique. J'ai montré qu'il est alors possible d'exciter efficacement par une onde plane l'état sous-radiant, étroit spectralement. Inversement, l'émission de l'état sous-radiant a lieu principalement dans le mode plasmonique, alors que l'émission dans tous les autres modes indésirables est supprimée; on parle alors de *radiance sélective*. Ceci se traduit par une exaltation du facteur de Purcell d'un ordre de grandeur par rapport au cas d'un émetteur unique. Ces systèmes permettraient d'obtenir des sources de photons plus efficaces, avec des comportements non-linéaires exaltés.

Dans la dernière partie de cette thèse, j'ai démontré expérimentalement le couplage fort entre un plasmon de surface et une assemblée de nanoplaquettes. Ces nanoparticules, découvertes récemment, sont des émetteurs de lumière colloïdaux, efficaces et présentant une meilleure pureté spectrale par rapport aux boîtes quantiques colloïdales. Les échantillons que j'ai fabriqués consistent en une couche de nanoplaquettes déposée sur un film mince d'or. La mesure du diagramme de réflectivité en configuration Kretschmann d'un tel échantillon fait apparaître deux branches de résonances qui s'anticroisent, correspondant aux modes polaritoniques excitons/plasmon. Le grand nombre de nanoplaquettes permet d'obtenir un tel couplage grâce à l'interaction cohérente du mode superradiant avec un même plasmon. J'ai par ailleurs monté un banc expérimental de microscopie du plan de Fourier qui servira à mesurer le diagramme de dispersion en fluorescence. Le but est de démontrer l'émission cohérente, et donc la possibilité d'obtenir des sources directives et polarisées.

## Perspectives

L'étude des effets collectifs en cavité est un domaine très riche, et de nombreuses pistes restent encore à explorer.

Concernant l'étude théorique, nous nous sommes limités dans ce projet au cas le plus simple possible, en se restreignant d'une part au cas de deux émetteurs, et d'autre part au cas perturbatif du couplage faible avec le résonateur. Ces deux points fournissent chacun des pistes d'approfondissement évidentes. Tout d'abord le passage à plusieurs émetteurs est une étape importante à franchir, pour pouvoir rompre certaines

symétries imposées par le fait d'avoir d'uniquement deux émetteurs. Il serait ainsi possible d'obtenir des états collectifs autres que l'état complètement symétrique ou antisymétrique. Il est aussi possible d'étudier des états à plusieurs excitations dans le système, afin d'analyser l'influence de couplages asymétriques entre émetteurs. Une autre perspective intéressante est celle du régime de couplage fort, qui devient de plus en plus accessible expérimentalement. La première conséquence est une hybridation uniquement de l'état superradiant avec le mode de cavité, due à son dipôle plus marqué. Cependant le cas particulièrement intéressant arrive lorsque le couplage avec le mode de cavité est assez intense et que les émetteurs sont légèrement en désaccord, pour ainsi pouvoir obtenir un couplage fort avec les modes sous-radiants et superradiants à la fois. Les nouveaux états propres seraient donc une combinaison linéaire des trois résonances différentes, ce qui ouvre la voie à une physique du système plus riche.

Un dernier point concerne la possibilité de mettre en commun le formalisme d'équation maîtresse avec celui du tenseur de Green. L'intérêt est de pouvoir prendre en compte à la fois les géométries particulières du résonateur, mais aussi les phénomènes non-linéaires et la statistique des photons émis.

La partie expérimentale n'est pas encore finalisée. Les mesures de photoluminescence des nanoplaquettes couplées fortement au plasmon de surface sont encore à obtenir. Celles-ci pourront permettre de vérifier la validité des modèles théoriques sur l'émission de lumière par des ensembles à température ambiante. La suite du projet concerne la réalisation d'échantillons avec des réseaux métalliques permettant de contrôler l'angle et la polarisation de l'émission. Des calculs pour la conception de ces échantillons sont déjà en cours dans le groupe. Par ailleurs, des mesures de durée de vie et de statistique de la lumière émise sont prévues avec le banc de photoluminescence que j'ai monté pendant ma thèse. L'objectif est de pouvoir réaliser ces mesures en fonction de la température grâce à l'utilisation de notre cryostat à hélium liquide. On s'attend à ce qu'à basse température il y ait moins de déphasage entre les nanoplaquettes et que les effets de superradiance soient plus marqués.

Une deuxième piste concerne l'étude à faible nombre de nanoplaquettes. Comme on l'a mentionné, les nanoplaquettes sont idéales pour étudier le couplage dipôle-dipôle entre émetteurs. Elles ont une faible largeur inhomogène et une force d'oscillateur élevée. De plus il est très facile d'obtenir des empilements à nombre contrôlé de nanoplaquettes par ajout de solvant polaire dans la solution avant dépôt. Ces études devront aussi être réalisées à froid, pour empêcher l'interaction avec les phonons. Un

## *Bilans et perspectives*

premier effet intéressant à observer serait celui d'une émission superradiante, même en absence de cavité, grâce notamment aux mesures de corrélation d'intensité.

# Bibliographie

- Abdussalam, W. et Machnikowski, P., “*Superradiance and enhanced luminescence from ensembles of a few self-assembled quantum dots,*” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **90**, 125307 (2014) [cité page 13].
- Abécassis, B., Tessier, M. D., Davidson, P., et Dubertret, B., “*Self-assembly of CdSe nanoplatelets into giant micrometer-scale needles emitting polarized light,*” *Nano Lett.* **14**, 710 (2014) [cité page 87 et 99].
- Aberra Guebrou, S., Symonds, C., Homeyer, E., Plenet, J. C., Gartstein, Y. N., Agranovich, V. M., et Bellessa, J., “*Coherent emission from a disordered organic semiconductor induced by strong coupling with surface plasmons,*” *Phys. Rev. Lett.* **108**, 066401 (2012) [cité page 11 et 82].
- Achtstein, A. W., Antanovich, A., Prudnikau, A., Scott, R., Woggon, U., et Artemyev, M., “*Linear Absorption in CdSe Nanoplates : Thickness and Lateral Size Dependency of the Intrinsic Absorption,*” *J. Phys. Chem. C* **119**, 20156 (2015) [cité page 87].
- Acuna, G. P., Möller, F. M., Holzmeister, P., Beater, S., Lalkens, B., et Tinnefeld, P., “*Fluorescence Enhancement at Docking Sites of DNA-Directed Self-Assembled Nanoantennas,*” *Science (80-. )*. **338**, 506 (2012) [cité page 71].
- Agarwal, G. S., “*Quantum electrodynamics in the presence of dielectrics and conductors. IV. General theory for spontaneous emission in finite geometries,*” *Phys. Rev. A* **12**, 1475 (1975) [cité page 16, 17, et 19].
- Aharonovich, I., Englund, D., et Toth, M., “*Solid-state single-photon emitters,*” *Nat. Photonics* **10**, 631 (2016) [cité page 38].
- Albert, F., Sivalertporn, K., Kasprzak, J., Strauß, M., Schneider, C., Höfling, S., Kamp, M., Forchel, A., Reitzenstein, S., Muljarov, E. A., et Langbein, W., “*Microcavity controlled coupling of excitonic qubits,*” *Nat. Commun.* **4**, 1747 (2013) [cité page 23].
- Amo, A., Lefrère, J., Pigeon, S., Adrados, C., Ciuti, C., Carusotto, I., Houdré, R., Giacobino, E., et Bramati, A., “*Superfluidity of polaritons in semiconductor microcavities,*” *Nat. Phys.* **5**, 805 (2009) [cité page 82].



## Bibliographie

- Andreani, L. C., Panzarini, G., Gérard, J.-M., et Panzarini, G., “*Strong-coupling regime for quantum boxes in pillar microcavities : theory,*” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **60**, 13276 (1999) [cité page 46, 86, et 99].
- Andrews, D. L. et Bradshaw, D. S., “*Virtual photons, dipole fields and energy transfer : A quantum electrodynamical approach,*” *Eur. J. Phys.* **25**, 845 (2004) [cité page 16].
- Angerer, A., Streltsov, K., Astner, T., Putz, S., Sumiya, H., Onoda, S., Isoya, J., Munro, W. J., Nemoto, K., Schmiedmayer, J., et Majer, J., “*Superradiant emission from colour centres in diamond,*” *Nat. Phys.* **14**, 1168 (2018) [cité page 13].
- Antanovich, A., Prudnikau, A., Matsukovich, A., Achtstein, A., et Artemyev, M., “*Self-Assembly of CdSe Nanoplatelets into Stacks of Controlled Size Induced by Ligand Exchange,*” *J. Phys. Chem. C* **120**, 5764 (2016) [cité page 87].
- Armen, M. A. et Mabuchi, H., “*Low-lying bifurcations in cavity quantum electrodynamics,*” *Phys. Rev. A* **73**, 63801 (2006) [cité page 21].
- Asenjo-Garcia, A., Moreno-Cardoner, M., Albrecht, A., Kimble, H. J., et Chang, D. E., “*Exponential Improvement in Photon Storage Fidelities Using Subradiance and "Selective Radiance" in Atomic Arrays,*” *Phys. Rev. X* **7**, 31024 (2017) [cité page 55].
- Aspuru-Guzik, A. et Walther, P., “*Photonic quantum simulators,*” *Nat. Phys.* **8**, 285 (2012) [cité page 37].
- Astafiev, O., Zagoskin, A. M., Abdumalikov, A. A., Pashkin, Y. A., Yamamoto, T., Inomata, K., Nakamura, Y., et Tsai, J. S., “*Resonance fluorescence of a single artificial atom.*” *Science* **327**, 840 (2010) [cité page 13 et 29].
- Auffèves, A., Besga, B., Gérard, J. M., et Poizat, J. P., “*Spontaneous emission spectrum of a two-level atom in a very-high- Q cavity,*” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **77**, 1 (2008) [cité page 41].
- Averkiev, N. S., Glazov, M. M., et Poddubnyi, A. N., “*Collective modes of quantum dot ensembles in microcavities,*” *J. Exp. Theor. Phys.* **108**, 836 (2009) [cité page 23].
- Bai, Q., Perrin, M., Sauvan, C., Hugonin, J.-P., et Lalanne, P., “*Efficient and intuitive method for the analysis of light scattering by a resonant nanostructure,*” *Opt. Express* **21**, 27371 (2013) [cité page 63].

- Belacel, C., Habert, B., Bigourdan, F., Marquier, F., Hugonin, J.-P., Michaelis de Vasconcellos, S., Lafosse, X., Coolen, L., Schwob, C., Javaux, C., Dubertret, B., Greffet, J.-J., Senellart, P., et Maitre, A., “*Controlling Spontaneous Emission with Plasmonic Optical Patch Antennas*,” *Nano Lett.* **13**, 1516 (2013) [cité page 38 et 64].
- Bellessa, J., Bonnand, C., Plenet, J. C., et Mugnier, J., “*Strong Coupling between Surface Plasmons and Excitons in an Organic Semiconductor*,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, 036404 (2004) [cité page 11 et 80].
- Bellessa, J., Symonds, C., Vynck, K., Lemaitre, A., Brioude, A., Beur, L., Plenet, J. C., Viste, P., Felbacq, D., Cambril, E., et Valvin, P., “*Giant Rabi splitting between localized mixed plasmon-exciton states in a two-dimensional array of nanosize metallic disks in an organic semiconductor*,” *Phys. Rev. B* **80**, 33303 (2009) [cité page 87].
- Bennett, A. J., Lee, J. P., Ellis, D. J., Farrer, I., Ritchie, D. A., et Shields, A. J., “*A semiconductor photon-sorter*,” *Nat. Nanotechnol.* **11**, 857 (2016) [cité page 13 et 32].
- Bennett, A. J., Patel, R. B., Skiba-Szymanska, J., Nicoll, C. A., Farrer, I., Ritchie, D. A., et Shields, A. J., “*Giant Stark effect in the emission of single semiconductor quantum dots*,” *Appl. Phys. Lett.* **97**, 31104 (2010) [cité page 40].
- Bogdanov, S. I., Shalaginov, M. Y., Lagutchev, A. S., Chiang, C.-C., Shah, D., Baburin, A. S., Ryzhikov, I. A., Rodionov, I. A., Kildishev, A. V., Boltasseva, A., et Shalae, V. M., “*Ultrabright Room-Temperature Sub-Nanosecond Emission from Single Nitrogen-Vacancy Centers Coupled to Nanopatch Antennas*,” *Nano Lett.* **18**, 4837 (2018) [cité page 64].
- Bohren, C. F. et Huffman, D. R., *Absorption and scattering of light by small particles* (Wiley-VCH Verlag GmbH, 1983) p. 700 [cité page 103].
- Bonifacio, R. et Lugiato, L., “*Cooperative effects and bistability for resonance fluorescence*,” *Opt. Commun.* **19**, 172 (1976) [cité page 9, 56, et 59].
- Brendel, J., Gisin, N., Tittel, W., et Zbinden, H., “*Pulsed energy-time entangled twin-photon source for quantum communication*,” *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2594 (1999) [cité page 39 et 52].

## Bibliographie

- Carmichael, H. J. et Walls, D. F., “*A quantum-mechanical master-equation treatment of the dynamical Stark effect,*” *J. Phys. B At. Mol. Phys.* **9**, 524 (1976) [cité page 33].
- Carminati, R., Greffet, J. J., Henkel, C., et Vigoureux, J. M., “*Radiative and non-radiative decay of a single molecule close to a metallic nanoparticle,*” *Opt. Commun.* **261**, 368 (2006) [cité page 81].
- Casabone, B., Friebe, K., Brandstätter, B., Schüppert, K., Blatt, R., et Northup, T. E., “*Enhanced quantum interface with collective ion-cavity coupling,*” *Phys. Rev. Lett.* **114**, 023602 (2015) [cité page 13 et 21].
- Cazé, A., Pierrat, R., et Carminati, R., “*Spatial Coherence in Complex Photonic and Plasmonic Systems,*” *Phys. Rev. Lett.* **110**, 63903 (2013) [cité page 61].
- Chang, D. E., Sørensen, A. S., Demler, E. A., et Lukin, M. D., “*A single-photon transistor using nanoscale surface plasmons,*” *Nat. Phys.* **3**, 807 (2007) [cité page 29].
- Chen, X. W., Sandoghdar, V., et Agio, M., “*Coherent interaction of light with a metallic structure coupled to a single quantum emitter : From superabsorption to cloaking,*” *Phys. Rev. Lett.* **110**, 153605 (2013) [cité page 57].
- Chikkaraddy, R., De Nijs, B., Benz, F., Barrow, S. J., Scherman, O. A., Rosta, E., Demetriadou, A., Fox, P., Hess, O., et Baumberg, J. J., “*Single-molecule strong coupling at room temperature in plasmonic nanocavities,*” *Nature* **535**, 127 (2016) [cité page 64 et 80].
- Claudon, J., Bleuse, J., Malik, N. S., Bazin, M., Jaffrennou, P., Gregersen, N., Sauvan, C., Lalanne, P., et Gérard, J. M., “*A highly efficient single-photon source based on a quantum dot in a photonic nanowire,*” *Nat. Photonics* **4**, 174 (2010) [cité page 38].
- Cohen-Tannoudji, C., Dupont-Roc, J., et Grynberg, G., *Processus d'interaction entre photons et atomes*, SAVOIRS ACTUELS (EDP Sciences, 2012) p. 648 [cité page 20].
- De Léséleuc, S., Barredo, D., Lienhard, V., Browaeys, A., et Lahaye, T., “*Optical Control of the Resonant Dipole-Dipole Interaction between Rydberg Atoms,*” *Phys. Rev. Lett.* **119**, 053202 (2017) [cité page 14].

- De Santis, L., Antón, C., Reznichenko, B., Somaschi, N., Coppola, G., Senellart, J., Gómez, C., Lemaître, A., Sagnes, I., White, A. G., Lanco, L., Auffèves, A., et Senellart, P., “A *solid-state single-photon filter*,” *Nat. Nanotechnol.* **12**, 663 (2017) [cité page 29, 32, et 43].
- Deng, H., Haug, H., et Yamamoto, Y., “*Exciton-polariton Bose-Einstein condensation*,” *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1489 (2010) [cité page 82].
- Devoe, R. G. et Brewer, R. G., “*Synchronous collapses and revivals of atomic dipole fluctuations and photon fano factor beyond the standard quantum limit*,” *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2049 (1996) [cité page 13 et 29].
- Dicke, R. H., “*Coherence in Spontaneous Radiation Processes*,” *Phys. Rev.* **93**, 99 (1954) [cité page 7, 13, et 14].
- Diniz, I., Portolan, S., Ferreira, R., Gérard, J. M., Bertet, P., et Auffèves, A., “*Strongly coupling a cavity to inhomogeneous ensembles of emitters : Potential for long-lived solid-state quantum memories*,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **84**, 063810 (2011) [cité page 57].
- Dintinger, J., Klein, S., Bustos, F., Barnes, W. L., et Ebbesen, T. W., “*Strong coupling between surface plasmon-polaritons and organic molecules in subwavelength hole arrays*,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **71**, 035424 (2005) [cité page 80].
- Elshaari, A. W., Büyükozer, E., Zadeh, I. E., Lettner, T., Zhao, P., Schöll, E., Gyger, S., Reimer, M. E., Dalacu, D., Poole, P. J., Jöns, K. D., et Zwiller, V., “*Strain-Tunable Quantum Integrated Photonics*,” *Nano Lett.* **18**, 7969 (2018) [cité page 14].
- Eschner, J., Raab, C., Schmidt-Kaler, F., et Blatt, R., “*Light interference from single atoms and their mirror images*,” *Nature* **413**, 495 (2001) [cité page 13].
- Esteban, R., Teperik, T. V., et Greffet, J. J., “*Optical patch antennas for single photon emission using surface plasmon resonances*,” *Phys. Rev. Lett.* **104**, 026802 (2010) [cité page 38].
- Evans, R. E., Bhaskar, M. K., Sukachev, D. D., Nguyen, C. T., Sipahigil, A., Burek, M. J., Machielse, B., Zhang, G. H., Zibrov, A. S., Bielejec, E., Park, H., Lončar, M., et Lukin, M. D., “*Photon-mediated interactions between quantum emitters in a diamond nanocavity*,” *Science (80- )*. **362**, 662 (2018) [cité page 14, 19, 21, 23, et 74].

## Bibliographie

- Faraon, A., Fushman, I., Englund, D., Stoltz, N., Petroff, P., et Vučković, J., “Coherent generation of non-classical light on a chip via photon-induced tunnelling and blockade,” *Nat. Phys.* **4**, 859 (2008) [cité page 29].
- Faraon, A., Majumdar, A., Kim, H., Petroff, P., et Vučković, J., “Fast electrical control of a quantum dot strongly coupled to a photonic-crystal cavity,” *Phys. Rev. Lett.* **104**, 047402 (2010) [cité page 38 et 48].
- Feldmann, J., Peter, G., Göbel, E. O., Dawson, P., Moore, K., Foxon, C., et Elliott, R. J., “Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells,” *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2337 (1987) [cité page 86].
- Feng, F., Nguyen, L. T., Nasilowski, M., Nadal, B., Dubertret, B., Coolen, L., et Maître, A., “Consequence of shape elongation on emission asymmetry for colloidal CdSe/CdS nanoplatelets,” *Nano Res.* **11**, 3593 (2018) [cité page 86].
- Ficek, Z. et Tanaś, R., “Entangled states and collective nonclassical effects in two-atom systems,” *Phys. Rep.* **372**, 369 (2002) [cité page 13, 16, et 36].
- Fink, J. M., Bianchetti, R., Baur, M., Göppl, M., Steffen, L., Filipp, S., Leek, P. J., Blais, A., et Wallraff, A., “Dressed collective qubit states and the Tavis-Cummings model in circuit QED,” *Phys. Rev. Lett.* **103**, 083601 (2009) [cité page 13 et 21].
- Flatten, L. C., Christodoulou, S., Patel, R. K., Buccheri, A., Coles, D. M., Reid, B. P., Taylor, R. A., Moreels, I., et Smith, J. M., “Strong Exciton-Photon Coupling with Colloidal Nanoplatelets in an Open Microcavity,” *Nano Lett.* **16**, 7137 (2016) [cité page 87].
- Gao, Y., Weidman, M. C., et Tisdale, W. A., “CdSe Nanoplatelet Films with Controlled Orientation of their Transition Dipole Moment,” *Nano Lett.* **17**, 3837 (2017) [cité page 86].
- Gazzano, O., De Vasconcellos, S. M., Gauthron, K., Symonds, C., Bloch, J., Voisin, P., Bellessa, J., Lemaître, A., et Senellart, P., “Evidence for confined Tamm plasmon modes under metallic microdisks and application to the control of spontaneous optical emission,” *Phys. Rev. Lett.* **107**, 247402 (2011) [cité page 64].
- Gazzano, O., Michaelis De Vasconcellos, S., Arnold, C., Nowak, A., Galopin, E., Sagnes, I., Lanco, L., Lemaître, A., et Senellart, P., “Bright solid-state sources of indistinguishable single photons,” *Nat. Commun.* **4**, 1425 (2013) [cité page 38].

- George, J., Wang, S., Chervy, T., Canaguier-Durand, A., Schaeffer, G., Lehn, J. M., Hutchison, J. A., Genet, C., et Ebbesen, T. W., “*Ultra-strong coupling of molecular materials : Spectroscopy and dynamics,*” *Faraday Discuss.* **178**, 281 (2015) [cité page 81 et 96].
- Giannelli, L., Schmit, T., et Morigi, G., “*Weak coherent pulses for single-photon quantum memories,*” *ArXiv* , 1 (2018) [cité page 48].
- Giesz, V., “*Quandela,*” (2017) [cité page 13].
- Giesz, V., Somaschi, N., Hornecker, G., Grange, T., Reznichenko, B., De Santis, L., Demory, J., Gomez, C., Sagnes, I., Lemaître, A., Krebs, O., Lanzillotti-Kimura, N. D., Lanco, L., Auffeves, A., et Senellart, P., “*Coherent manipulation of a solid-state artificial atom with few photons,*” *Nat. Commun.* **7**, 11986 (2016) [cité page 13, 17, et 50].
- Gómez, D. E., Vernon, K. C., Mulvaney, P., et Davis, T. J., “*Surface plasmon mediated strong exciton-photon coupling in semiconductor nanocrystals,*” *Nano Lett.* **10**, 274 (2010) [cité page 80 et 98].
- Greffet, J. J., Bouchon, P., Brucoli, G., et Marquier, F., “*Light Emission by Nonequilibrium Bodies : Local Kirchhoff Law,*” *Phys. Rev. X* **8**, 21008 (2018) [cité page 81 et 96].
- Greffet, J.-J., Carminati, R., Joulain, K., Mulet, J.-P., Mainguy, S., et Chen, Y., “*Coherent emission of light by thermal sources,*” *Nature* **416**, 61 (2002) [cité page 81].
- Gross, M. et Haroche, S., “*Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission,*” *Phys. Rep.* **93**, 301 (1982) [cité page 7].
- Guendelman, G., Rosenblum, S., Shomroni, I., Dayan, B., Bechler, O., et Lovsky, Y., “*All-optical routing of single photons by a one-atom switch controlled by a single photon,*” *Science* (80-. ). **345**, 903 (2014) [cité page 13, 29, et 32].
- Guzelturk, B., Erdem, O., Olutas, M., Kelestemur, Y., et Demir, H. V., “*Stacking in colloidal nanoplatelets : Tuning excitonic properties,*” *ACS Nano* **8**, 12524 (2014a) [cité page 87].
- Guzelturk, B., Kelestemur, Y., Olutas, M., Delikanli, S., et Demir, H. V., “*Amplified spontaneous emission and lasing in colloidal nanoplatelets,*” *ACS Nano* **8**, 6599 (2014b) [cité page 87 et 99].

## Bibliographie

- Hacker, B., Welte, S., Rempe, G., et Ritter, S., “A photon–photon quantum gate based on a single atom in an optical resonator,” *Nature* **536**, 193 (2016) [cité page 32].
- Hakala, T. K., Moilanen, A. J., Väkeväinen, A. I., Guo, R., Martikainen, J. P., Daskalakis, K. S., Rekola, H. T., Julku, A., et Törmä, P., “Bose-Einstein condensation in a plasmonic lattice,” *Nat. Phys.* **14**, 739 (2018) [cité page 82].
- Halas, N. J., Lal, S., Chang, W.-s., Link, S., et Nordlander, P., “Plasmons in Strongly Coupled Metallic Nanostructures,” *Chem. Rev.* **111**, 3913 (2011) [cité page 71].
- Haroche, S. et Raimond, J.-M., *Exploring the quantum : atoms, cavities and photons* (Oxford University Press, 2006) p. 605 [cité page 17].
- Hassan, S. S., Drummond, P. D., et Walls, D. F., “Dispersive optical bistability in a ring cavity,” *Opt. Commun.* **27**, 480 (1978) [cité page 56].
- Hoang, T. B., Akselrod, G. M., et Mikkelsen, M. H., “Ultrafast Room-Temperature Single Photon Emission from Quantum Dots Coupled to Plasmonic Nanocavities,” *Nano Lett.* **16**, 270 (2016) [cité page 87].
- Hoi, I.-C., Wilson, C. M., Johansson, G., Palomaki, T., Peropadre, B., et Delsing, P., “Demonstration of a Single-Photon Router in the Microwave Regime,” *Phys. Rev. Lett.* **107**, 073601 (2011) [cité page 13 et 29].
- Homola, J., “Electromagnetic Theory of Surface Plasmons,” dans *Surf. Plasmon Reson. Based Sensors*, edited by J. Homola (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2006) pp. 3–44 [cité page 91].
- Howard, L. A., Weinhold, T. J., Combes, J., Shahandeh, F., Vanner, M. R., Ringbauer, M., et White, A. G., “Hypercube States for Sub-Planck Sensing,” *ArXiv* **1811**, 1 (2018) [cité page 54].
- Hugonin, A. J. P. et Lalanne, P., “Reticolo software for grating analysis, Institut d’Optique, Orsay, France 2005.” , 1 (2012) [cité page 92].
- Hwang, J., Pototschnig, M., Lettow, R., Zumofen, G., Renn, A., Göttinger, S., et Sandoghdar, V., “A single-molecule optical transistor,” *Nature* **460**, 76 (2009) [cité page 29].
- Imamoglu, A., Ram, R. J., Pau, S., et Yamamoto, Y., “Nonequilibrium condensates and lasers without inversion : Exciton-polariton lasers,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **53**, 4250 (1996) [cité page 82].

- Imoto, N., Haus, H. A., et Yamamoto, Y., “*Quantum nondemolition measurement of the photon number via the optical Kerr effect,*” *Phys. Rev. A* **32**, 2287 (1985) [cité page 29].
- Ithurria, S., Tessier, M. D., Mahler, B., Lobo, R. P., Dubertret, B., et Efros, A. L., “*Colloidal nanoplatelets with two-dimensional electronic structure,*” *Nat. Mater.* **10**, 936 (2011) [cité page 11, 80, et 86].
- Javaux, C., Mahler, B., Dubertret, B., Shabaev, A., Rodina, A. V., Efros, A. L., Yakovlev, D. R., Liu, F., Bayer, M., Camps, G., Biadala, L., Buil, S., Quelin, X., Hermier, J.-P., Buil, S., Javaux, C., Efros, A. L., Liu, F., Dubertret, B., Quelin, X., Bayer, M., Mahler, B., Biadala, L., et Camps, G., “*Thermal activation of non-radiative Auger recombination in charged colloidal nanocrystals,*” *Nat. Nanotechnol.* **8**, 206 (2013) [cité page 87].
- Jin, C. Y., Johne, R., Swinkels, M. Y., Hoang, T. B., Midolo, L., Van Veldhoven, P. J., et Fiore, A., “*Ultrafast non-local control of spontaneous emission,*” *Nat. Nanotechnol.* **9**, 886 (2014) [cité page 39].
- Johnson, P. B. et Christy, R. W., “*Optical Constants of the Noble Metals,*” *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972) [cité page 93].
- Joulain, K., Carminati, R., Mulet, J. P., et Greffet, J. J., “*Definition and measurement of the local density of electromagnetic states close to an interface,*” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **68**, 1 (2003) [cité page 61].
- Kaluzny, Y., Goy, P., Gross, M., Raimond, J. M., et Haroche, S., “*Observation of self-induced Rabi oscillations in two-level atoms excited inside a resonant cavity : The ringing regime of superradiance,*” *Phys. Rev. Lett.* **51**, 1175 (1983) [cité page 79 et 80].
- Keller, M., Lange, B., Hayasaka, K., Lange, W., et Walther, H., “*Continuous generation of single photons with controlled waveform in an ion-trap cavity system,*” *Nature* **431**, 1075 (2004) [cité page 39].
- Kim, D., Carter, S. G., Greulich, A., Bracker, A. S., et Gammon, D., “*Ultrafast optical control of entanglement between two quantum-dot spins,*” *Nat. Phys.* **7**, 223 (2011) [cité page 14].



## Bibliographie

- Kim, H., Bose, R., Shen, T. C., Solomon, G. S., et Waks, E., “A quantum logic gate between a solid-state quantum bit and a photon,” *Nat. Photonics* **7**, 373 (2013) [cité page 48].
- Kim, J. H., Aghaeimeibodi, S., Richardson, C. J., Leavitt, R. P., et Waks, E., “Super-Radiant Emission from Quantum Dots in a Nanophotonic Waveguide,” *Nano Lett.* **18**, 4734 (2018) [cité page 14, 21, et 100].
- Kimble, H. J., “Structure and dynamics in cavity quantum electrodynamics,” dans *Cavity Quantum Electrodyn.*, edited by P. R. Berman (Academic Press, 1994) p. 464 [cité page 30].
- Knill, E., Laflamme, R., et Milburn, G. J., “A scheme for efficient quantum computation with linear optics,” *Nature* **409**, 46 (2001) [cité page 37].
- Kok, P., Munro, W. J., Nemoto, K., Ralph, T. C., Dowling, J. P., et Milburn, G. J., “Linear optical quantum computing with photonic qubits,” *Rev. Mod. Phys.* **79**, 135 (2007) [cité page 37].
- Kretschmann, E. et Raether, H., “Notizen: Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light,” (1968) [cité page 83].
- Kuhn, A., Hennrich, M., et Rempe, G., “Deterministic Single-Photon Source for Distributed Quantum Networking,” *Phys. Rev. Lett.* **89**, 067901 (2002) [cité page 39].
- Kuklewicz, C. E., Malein, R. N. E., Petroff, P. M., et Gerardot, B. D., “Electro-elastic tuning of single particles in individual self-assembled quantum dots,” *Nano Lett.* **12**, 3761 (2012) [cité page 14, 38, et 48].
- Lanco, L. et Senellart, P., “A highly efficient single photon-single quantum dot interface,” dans *Eng. Atom-phot. Interact.*, edited by Predojevick et Mitchell (Springer, 2015) pp. 39–71, [arXiv:1502.01062](https://arxiv.org/abs/1502.01062) [cité page 27].
- Laucht, A., Hofbauer, F., Hauke, N., Angele, J., Stobbe, S., Kaniber, M., Böhm, G., Lodahl, P., Amann, M.-C., et Finley, J. J., “Electrical control of spontaneous emission and strong coupling for a single quantum dot,” *New J. Phys.* **11**, 023034 (2009) [cité page 38 et 48].
- Laucht, A., Villas-Bôas, J. M., Stobbe, S., Hauke, N., Hofbauer, F., Böhm, G., Lodahl, P., Amann, M. C., Kaniber, M., et Finley, J. J., “Mutual coupling of two

- semiconductor quantum dots via an optical nanocavity*,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **82**, 075305 (2010) [cité page 14, 19, et 23].
- Lehmberg, R. H., “*Radiation from an N-atom system. I. General formalism*,” *Phys. Rev. A* **2**, 883 (1970) [cité page 15, 16, et 17].
- Li, Z. et Peng, X., “*Size/Shape-Controlled Synthesis of Colloidal CdSe Quantum Disks : Ligand and Temperature Effects*,” *J. Am. Chem. Soc.* **133**, 6578 (2011) [cité page 103].
- Lidzey, D. G., Bradley, D. D. C., Virgili, T., Armitage, A., Skolnick, M. S., et Walker, S., “*Room Temperature Polariton Emission from Strongly Coupled Organic Semiconductor Microcavities*,” *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3316 (1999) [cité page 96].
- Lodahl, P., Mahmoodian, S., et Stobbe, S., “*Interfacing single photons and single quantum dots with photonic nanostructures*,” *Rev. Mod. Phys.* **87**, 347 (2015) [cité page 37 et 38].
- Lounis, B. et Orrit, M., “*Single-photon sources*,” *Reports Prog. Phys.* **68**, 1129 (2005) [cité page 50].
- Luk’Yanchuk, B., Zheludev, N. I., Maier, S. A., Halas, N. J., Nordlander, P., Giessen, H., et Chong, C. T., “*The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials*,” *Nat. Mater.* **9**, 707 (2010) [cité page 71].
- Lyuboshitz, V. L., “*Resonance Interaction Between Two Identical Dipole Emitters*,” *J. Exp. Theor. Phys.* **26**, 937 (1968) [cité page 16 et 17].
- Madsen, K. H., Ates, S., Liu, J., Javadi, A., Albrecht, S. M., Yeo, I., Stobbe, S., et Lodahl, P., “*Efficient out-coupling of high-purity single photons from a coherent quantum dot in a photonic-crystal cavity*,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **90**, 155303 (2014) [cité page 38].
- Marquier, F., Sauvan, C., et Greffet, J. J., “*Revisiting quantum optics with surface plasmons and plasmonic resonators*,” *ACS Photonics* **4**, 2091 (2017) [cité page 8].
- Masumoto, Y. et Takagahara, T., *Semiconductor Quantum Dots* (Springer Berlin Heidelberg, 2002) p. 487 [cité page 14].
- Matsko, A. B., *Practical Applications of Microresonators in Optics and Photonics*, Optical Science and Engineering (CRC Press, 2009) [cité page 39].

## Bibliographie

- Melnikau, D., Esteban, R., Savateeva, D., Sánchez-Iglesias, A., Grzelczak, M., Schmidt, M. K., Liz-Marzán, L. M., Aizpurua, J., et Rakovich, Y. P., “*Rabi Splitting in Photoluminescence Spectra of Hybrid Systems of Gold Nanorods and J-Aggregates*,” *J. Phys. Chem. Lett.* **7**, 354 (2016) [cité page 80 et 81].
- Milonni, P. W., “*Why spontaneous emission ?*” *Am. J. Phys.* **52**, 340 (1984) [cité page 8].
- Naeem, A., Masia, F., Christodoulou, S., Moreels, I., Borri, P., et Langbein, W., “*Giant exciton oscillator strength and radiatively limited dephasing in two-dimensional platelets*,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **91**, 121302 (2014) [cité page 86 et 99].
- Neuman, T. et Aizpurua, J., “*Origin of the asymmetric light emission from molecular exciton-polaritons*,” *Optica* **5**, 1247 (2018) [cité page 81].
- Neuzner, A., Körber, M., Morin, O., Ritter, S., et Rempe, G., “*Interference and dynamics of light from a distance-controlled atom pair in an optical cavity*,” *Nat. Photonics* **10**, 303 (2016) [cité page 13 et 21].
- Novotny, L. et Hecht, B., *Principles of Nano-Optics* (Cambridge University Press, 2012) [cité page 60].
- O’Brien, J. L., Furusawa, A., et Vučković, J., “*Photonic quantum technologies*,” *Nat. Photonics* **3**, 687 (2009) [cité page 37].
- Olmon, R. L., Slovick, B., Johnson, T. W., Shelton, D., Oh, S. H., Boreman, G. D., et Raschke, M. B., “*Optical dielectric function of gold*,” *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **86**, 235147 (2012) [cité page 63 et 95].
- Palik, E. D., *Handbook of Optical Constants of Solids* (Academic Press, 1997) [cité page 16].
- Pavolini, D., Crubellier, A., Pillet, P., Cabaret, L., et Liberman, S., “*Experimental Evidence for Subradiance*,” *Phys. Rev. Lett.* **54**, 1917 (1985) [cité page 10].
- Pazzagli, S., Lombardi, P., Martella, D., Colautti, M., Tiribilli, B., Cataliotti, F. S., et Toninelli, C., “*Self-Assembled Nanocrystals of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons Show Photostable Single-Photon Emission*,” *ACS Nano* **12**, 4295 (2018) [cité page 74].

- Petruzzella, M., Xia, T., Pagliano, F., Birindelli, S., Midolo, L., Zobenica, Z., Li, L. H., Linfield, E. H., et Fiore, A., “Fully tuneable, Purcell-enhanced solid-state quantum emitters,” *Appl. Phys. Lett.* **107** (2015), 10.1063/1.4932946 [cité page 38 et 48].
- Plankensteiner, D., Sommer, C., Reitz, M., Ritsch, H., et Genes, C., “Enhanced collective Purcell effect of coupled quantum emitter systems,” *ArXiv* **1811, 1** (2018) [cité page 59 et 63].
- Plankensteiner, D., Sommer, C., Ritsch, H., et Genes, C., “Cavity Antiresonance Spectroscopy of Dipole Coupled Subradiant Arrays,” *Phys. Rev. Lett.* **119**, 093601 (2017) [cité page 56 et 62].
- Purcell, E. M., “Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies,” *Phys. Rev.* **69**, 839 (1946) [cité page 7, 13, et 38].
- Radulaski, M., Fischer, K. A., Lagoudakis, K. G., Zhang, J. L., et Vučković, J., “Photon blockade in two-emitter-cavity systems,” *Phys. Rev. A* **96**, 11801 (2017) [cité page 23].
- Raimond, J. M., Brune, M., et Haroche, S., “Colloquium : Manipulating quantum entanglement with atoms and photons in a cavity,” *Rev. Mod. Phys.* **73**, 565 (2001) [cité page 81].
- Raizen, M. G., Thompson, R. J., Brecha, R. J., Kimble, H. J., et Carmichael, H. J., “Normal-mode splitting and linewidth averaging for two-state atoms in an optical cavity,” *Phys. Rev. Lett.* **63**, 240 (1989) [cité page 80].
- Ramezani, M., Halpin, A., Fernández-Domínguez, A. I., Feist, J., Rodriguez, S. R.-K., Garcia-Vidal, F. J., Gómez-Rivas, J., et Gómez Rivas, J., “Plasmon-Exciton-Polariton Lasing,” *Optica* **4**, 22 (2016) [cité page 82].
- Ratchford, D., Shafiei, F., Kim, S., Gray, S. K., et Li, X., “Manipulating coupling between a single semiconductor quantum dot and single gold nanoparticle,” *Nano Lett.* **11**, 1049 (2011) [cité page 71].
- Reimann, R., Alt, W., Kampschulte, T., Macha, T., Ratschbacher, L., Thau, N., Yoon, S., et Meschede, D., “Cavity-modified collective rayleigh scattering of two atoms,” *Phys. Rev. Lett.* **114**, 023601 (2015) [cité page 13 et 21].
- Reiserer, A. et Rempe, G., “Cavity-based quantum networks with single atoms and optical photons,” *Rev. Mod. Phys.* **87**, 1379 (2015) [cité page 13 et 19].

## Bibliographie

- Reithmaier, J. P., Sęk, G., Löffler, A., Hofmann, C., Kuhn, S., Reitzenstein, S., Keldysh, L. V., Kulakovskii, V. D., Reinecke, T. L., et Forchel, A., “*Strong coupling in a single quantum dot–semiconductor microcavity system,*” *Nature* **432**, 197 (2004) [cité page 80].
- Rempe, G., Walther, H., et Klein, N., “*Observation of Quantum Collapse and Revival in a One-Atom Maser,*” *Phys. Rev. Lett.* **58**, 353 (1987) [cité page 79].
- Schilder, N. J., Sauvan, C., Hugonin, J. P., Jennewein, S., Sortais, Y. R., Browaeys, A., et Greffet, J. J., “*Polaritonic modes in a dense cloud of cold atoms,*” *Phys. Rev. A* **93**, 1510.07993 (2016) [cité page 13].
- Scott, R., Achtstein, A. W., Prudnikau, A., Antanovich, A., Christodoulou, S., Moreels, I., Artemyev, M., et Woggon, U., “*Two Photon Absorption in II-VI Semiconductors : The Influence of Dimensionality and Size,*” *Nano Lett.* **15**, 4985 (2015) [cité page 87].
- Scott, R., Achtstein, A. W., Prudnikau, A. V., Antanovich, A., Siebbeles, L. D., Artemyev, M., et Woggon, U., “*Time-Resolved Stark Spectroscopy in CdSe Nanoplatelets : Exciton Binding Energy, Polarizability, and Field-Dependent Radiative Rates,*” *Nano Lett.* **16**, 6576 (2016) [cité page 105].
- Scott, R., Heckmann, J., Prudnikau, A. V., Antanovich, A., Mikhailov, A., Owschimikow, N., Artemyev, M., Climente, J. I., Woggon, U., Grosse, N. B., et Achtstein, A. W., “*Directed emission of CdSe nanoplatelets originating from strongly anisotropic 2D electronic structure,*” *Nat. Nanotechnol.* **12**, 1155 (2017) [cité page 86].
- Senellart, P., Solomon, G., et White, A., “*High-performance semiconductor quantum-dot single-photon sources,*” *Nat. Nanotechnol.* **12**, 1026 (2017) [cité page 38].
- She, C., Fedin, I., Dolzhanov, D. S., Dahlberg, P. D., Engel, G. S., Schaller, R. D., et Talapin, D. V., “*Red, Yellow, Green, and Blue Amplified Spontaneous Emission and Lasing Using Colloidal CdSe Nanoplatelets,*” *ACS Nano* **9**, 9475 (2015) [cité page 87].
- Sihvola, A. et Kong, J., “*Effective permittivity of dielectric mixtures,*” *IEEE Transactions Geosci. Remote Sens.* **26** (1988), 10.1049/ip-map:19990392 [cité page 103].
- Sipahigil, A., Evans, R. E., Sukachev, D. D., Burek, M. J., Borregaard, J., Bhaskar, M. K., Nguyen, C. T., Pacheco, J. L., Atikian, H. A., Meuwly, C., Camacho, R. M.,

- Jelezko, F., Bielejec, E., Park, H., Lončar, M., et Lukin, M. D., “*An integrated diamond nanophotonics platform for quantum-optical networks.*” *Science* **354**, 847 (2016) [cité page 13].
- Snijders, H., Frey, J. A., Norman, J., Bakker, M. P., Langman, E. C., Gossard, A., Bowers, J. E., van Exter, M. P., Bouwmeester, D., et Löffler, W., “*Purification of a single-photon nonlinearity,*” *Nat. Commun.* **7**, 12578 (2016) [cité page 17 et 32].
- Somaschi, N., Giesz, V., De Santis, L., Loredo, J. C., Almeida, M. P., Hornecker, G., Portalupi, S. L., Grange, T., Antón, C., Demory, J., Gómez, C., Sagnes, I., Lanzillotti-Kimura, N. D., Lemaître, A., Auffeves, A., White, A. G., Lanco, L., et Senellart, P., “*Near-optimal single-photon sources in the solid state,*” *Nat. Photonics* **10**, 340 (2016) [cité page 13, 19, et 38].
- Sonnenberg, D., Küster, A., Graf, A., Heyn, C., et Hansen, W., “*Vertically stacked quantum dot pairs fabricated by nanohole filling,*” *Nanotechnology* **25** (2014), 10.1088/0957-4484/25/21/215602 [cité page 40].
- Stobińska, M., Alber, G., et Leuchs, G., “*Perfect excitation of a matter qubit by a single photon in free space,*” *Epl* **86** (2009), 10.1209/0295-5075/86/14007 [cité page 49].
- Su, C. H., Greentree, A. D., Munro, W. J., Nemoto, K., et Hollenberg, L. C., “*Pulse shaping by coupled cavities : Single photons and qudits,*” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.* **80**, 033811 (2009) [cité page 39 et 52].
- Su, C.-H., Greentree, A. D., Munro, W. J., Nemoto, K., et Hollenberg, L. C. L., “*High-speed quantum gates with cavity quantum electrodynamics,*” *Phys. Rev. A* **78**, 062336 (2008) [cité page 39].
- Szychowski, B., Pelton, M., et Daniel, M. C., “*Preparation and properties of plasmonic-excitonic nanoparticle assemblies,*” *Nanophotonics* **0168**, 1515 (2018) [cité page 72].
- Tan, S. M., “*Computational toolbox for quantum and atomic optics,*” *J. Opt. B Quantum Semiclassical Opt.* **1**, 424 (1999) [cité page 27].
- Tang, J., Xia, J., Fang, M., Bao, F., Cao, G., Shen, J., Evans, J., et He, S., “*Selective far-field addressing of coupled quantum dots in a plasmonic nanocavity,*” *Nat. Commun.* **9** (2018), 10.1038/s41467-018-04077-z [cité page 72].

## Bibliographie

- Tanji-Suzuki, H., Leroux, I. D., Schleier-Smith, M. H., Cetina, M., Grier, A. T., Simon, J., et Vuletić, V., “*Interaction between Atomic Ensembles and Optical Resonators. Classical Description,*” *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **60**, 201 (2011) [cité page 57].
- Tavis, M. et Cummings, F. W., “*Exact solution for an N-molecule-radiation-field Hamiltonian,*” *Phys. Rev.* **170**, 379 (1968) [cité page 15 et 21].
- Tessier, M. D., Javaux, C., Maksimovic, I., Loriette, V., et Dubertret, B., “*Spectroscopy of single CdSe nanoplatelets,*” *ACS Nano* **6**, 6751 (2012) [cité page 99 et 100].
- Thompson, R. J., Rempe, G., et Kimble, H. J., “*Observation of normal-mode splitting for an atom in an optical cavity,*” *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1132 (1992) [cité page 80].
- Thyrrestrup, H., Hartsuiker, A., Gérard, J.-M., et Vos, W. L., “*Non-exponential spontaneous emission dynamics for emitters in a time-dependent optical cavity,*” *Opt. Soc.* **21**, 23130 (2013) [cité page 38 et 39].
- Tiecke, T. G., Thompson, J. D., De Leon, N. P., Liu, L. R., Vuletić, V., et Lukin, M. D., “*Nanophotonic quantum phase switch with a single atom,*” *Nature* **508**, 241 (2014) [cité page 13].
- Törma, P. et Barnes, W. L., “*Strong coupling between surface plasmon polaritons and emitters : A review,*” *Reports Prog. Phys.* **78**, 013901 (2015) [cité page 80 et 98].
- Tufarelli, T., Ferraro, A., Serafini, A., Bose, S., et Kim, M. S., “*Coherently opening a high- Q cavity,*” *Phys. Rev. Lett.* **112**, 133605 (2014) [cité page 39].
- Unold, T., Mueller, K., Lienau, C., Elsaesser, T., et Wieck, A. D., “*Optical stark effect in a quantum dot : Ultrafast control of single exciton polarizations,*” *Phys. Rev. Lett.* **92**, 157401 (2004) [cité page 40].
- Unold, T., Mueller, K., Lienau, C., Elsaesser, T., et Wieck, A. D., “*Optical control of excitons in a pair of quantum dots coupled by the Dipole-Dipole interaction,*” *Phys. Rev. Lett.* **94**, 137404 (2005) [cité page 13].
- Van Loo, A. F., Fedorov, A., Lalumière, K., Sanders, B. C., Blais, A., et Wallraff, A., “*Photon-mediated interactions between distant artificial atoms,*” *Science* (80-. ) **342**, 1494 (2013) [cité page 13 et 14].
- Verellen, N., Sonnefraud, Y., Sobhani, H., Hao, F., Moshchalkov, V. V., Dorpe, P. V., Nordlander, P., Maier, S. A., Sobhani, H., Sonnefraud, Y., Verellen, N., Nordlander,

- P., Hao, F., Sonnefraud, Y., Sobhani, H., Hao, F., Moshchalkov, V. V., Dorpe, P. V., Nordlander, P., et Maier, S. A., “*Fano Resonances in Individual Coherent Plasmonic Nanocavities*,” [Nano Lett.](#) **9**, 1663 (2009) [cité page 71 et 72].
- Ville, J., “*Théorie et Applications de la Notion de Signal Analytique*,” Câbles Transm. **2A**, 61 (1948) [cité page 52].
- Volz, T., Reinhard, A., Winger, M., Badolato, A., Hennessy, K. J., Hu, E. L., et Imamoğlu, A., “*Ultrafast all-optical switching by single photons*,” [Nat. Photonics](#) **6**, 605 (2012) [cité page 32].
- Wallquist, M., Hammerer, K., Rabl, P., Lukin, M., et Zoller, P., “*Hybrid quantum devices and quantum engineering*,” [Phys. Scr. T](#) **T137**, 014001 (2009) [cité page 38].
- Wallraff, A., Schuster, D. I., Blais, A., Frunzio, L., Majer, J., Kumar, S., Girvin, S. M., et Schoelkopf, R. J., “*Strong coupling of a single photon to a superconducting qubit using circuit quantum electrodynamics*,” [Nature](#) **431**, 0 (2004) [cité page 80].
- Walls, D. F. et Milburn, G. J., [Quantum Opt.](#) (Springer-Verlag, 2008) pp. 1–425, [arXiv:arXiv:1011.1669v3](#) [cité page 33].
- Wang, H., Aassime, A., Le Roux, X., Schilder, N. J., Greffet, J.-J. J., et Degiron, A., “*Revisiting the Role of Metallic Antennas to Control Light Emission by Lead Salt Nanocrystal Assemblies*,” [Phys. Rev. Appl.](#) **10**, 1 (2018) [cité page 81].
- Wang, H., He, Y., Li, Y. H., Su, Z. E., Li, B., Huang, H. L., Ding, X., Chen, M. C., Liu, C., Qin, J., Li, J. P., He, Y. M., Schneider, C., Kamp, M., Peng, C. Z., Höfling, S., Lu, C. Y., et Pan, J. W., “*High-efficiency multiphoton boson sampling*,” [Nat. Photonics](#) **11**, 361 (2017) [cité page 13 et 38].
- Weisbuch, C., Nishioka, M., Ishikawa, A., et Arakawa, Y., “*Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity*,” [Phys. Rev. Lett.](#) **69**, 3314 (1992) [cité page 80].
- Weisskopf, V. et Wigner, E., “*Berechnung der natürlichen Linienbreite auf Grund der Diracschen Lichttheorie*,” [Zeitschrift für Phys.](#) **63**, 54 (1930) [cité page 7].
- Wersäll, M., Cuadra, J., Antosiewicz, T. J., Balci, S., et Shegai, T., “*Observation of Mode Splitting in Photoluminescence of Individual Plasmonic Nanoparticles Strongly Coupled to Molecular Excitons*,” [Nano Lett.](#) **17**, 551 (2017) [cité page 96].



- Widhalm, A., Mukherjee, A., Krehs, S., Sharma, N., Kölling, P., Thiede, A., Reuter, D., Förstner, J., et Zrenner, A., “*Ultrafast electric phase control of a single exciton qubit,*” *Appl. Phys. Lett.* **112**, 111105 (2018) [cité page 40].
- Williams, M., “*The Merck Index : An Encyclopedia of Chemicals, Drugs, and Biologicals,*” *Drug Dev. Res.* **74**, 339 (2013) [cité page 103].
- Winkler, J. M., Rabouw, F. T., Rossinelli, A. A., Jayanti, S. V., McPeak, K. M., Kim, D. K., le Feber, B., Prins, F., et Norris, D. J., “*Room-Temperature Strong Coupling of CdSe Nanoplatelets and Plasmonic Hole Arrays,*” *Nano Lett.* **19**, 108 (2019) [cité page 87, 95, 96, 98, 99, et 105].
- Yang, Z., Pelton, M., Fedin, I., Talapin, D. V., et Waks, E., “*A room temperature continuous-wave nanolaser using colloidal quantum wells,*” *Nat. Commun.* **8**, 143 (2017) [cité page 87].
- Yoshie, T., Scherer, A., Hendrickson, J., Khitrova, G., Gibbs, H. M., Rupper, G., Ell, C., Shchekin, O. B., et Deppe, D. G., “*Vacuum Rabi splitting with a single quantum dot in a photonic crystal nanocavity,*” *Nature* **432**, 200 (2004) [cité page 80].



**Titre :** Contrôle de l'émission spontanée de lumière par effets collectifs en présence d'un résonateur

**Mots clés :** Effets collectifs, Interaction lumière-matière, Microcavité, Superradiance

**Résumé :** L'émission spontanée de lumière par un émetteur n'est pas un processus intrinsèque.

D'une part, il dépend de l'environnement électromagnétique. D'autre part, il dépend de la présence d'autres émetteurs avec lesquels il peut interagir et générer des interférences.

Ces deux effets ont été, dans la plupart des cas, étudiés de manière indépendante. L'objectif de cette thèse est d'explorer comment contrôler l'émission de lumière en utilisant simultanément ces deux types d'effets.

La première partie est consacrée à une étude théorique d'un système idéal de deux émetteurs couplés à un résonateur. Les deux émetteurs sont placés à proximité, et l'interaction dipôle-dipôle conduit à la formation de deux états, superradiant et sous-radiant. Le système que l'on obtient agit en tant que source et mémoire quantique de

photons uniques, efficace et modulable.

On étudie ensuite le cas d'un résonateur plasmonique, à symétrie spatiale antisymétrique, qui permet d'exciter efficacement l'état sous-radiant. On montre qu'on obtient ainsi une forte exaltation de l'effet Purcell, tout en conservant un état spectralement étroit.

La deuxième partie explore un système comportant un très grand nombre d'émetteurs couplés à un plasmon de surface se propageant le long d'une interface métal air. Les émetteurs sont des nanoplaquettes, ou puits quantiques colloïdaux. Lorsqu'un film de nanoplaquettes est déposé sur le métal, il est possible d'obtenir un couplage fort. Ce couplage au plasmon de surface permet d'obtenir une émission directive et polarisée.

**Title :** Combining collective effects and resonators to control spontaneous emission

**Keywords :** Collective effects, Light-matter interaction, Microcavity, Superradiance

**Abstract:** Spontaneous emission of light is not an intrinsic property of an emitter. On one hand, it depends on the electromagnetic environment. On the other hand, it depends on the presence of other emitters with whom it may interact and generate interferences. Up to date, very few studies address the question of multiple interacting emitters coupled to a resonator. The goal of this thesis is to combine both collective effects and nanoresonators to control the spontaneous emission and scattering of light emitters. First, we theoretically study an ideal system consisting of two emitters coupled to a resonator. The emitters are in close proximity, and the dipole-dipole interaction generates a superradiant state and a subradiant state. The system that we obtain behaves as an efficient, and tunable,

single photon source and quantum memory.

We then switch to the case of a plasmonic resonator with an antisymmetric mode, which allows to efficiently excite the subradiant state. We show that this results in an enhancement of the Purcell effect while maintaining a spectrally narrow state.

In the second part of this thesis, we explore a system of a large number of emitters coupled to a surface plasmon travelling along a metal-air interface.

The emitters are nanoplatelets, also called colloidal quantum wells. Strong coupling is obtained when a layer of nanoplatelets is deposited on top of the metal. The coupling of the nanoplatelets to the surface plasmon allows to obtain directional and polarized light emission.

