



HAL
open science

Contrôle de l'émission de lumière par une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à un résonateur

Hector Monin

► **To cite this version:**

Hector Monin. Contrôle de l'émission de lumière par une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à un résonateur. Physique [physics]. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASP035 . tel-04441726

HAL Id: tel-04441726

<https://pastel.hal.science/tel-04441726v1>

Submitted on 6 Feb 2024

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 de lumière par une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à un résonateur

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

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

Hector MONIN

Composition du jury :

Gérard Colas des Francs Professeur, Université de Bourgogne	Rapporteur
Laurent Coolen Maître de conférence, Sorbonne Université	Rapporteur
Agnès Maître Professeur, Sorbonne Université	Présidente
Jean-Pierre Hermier Professeur, Université de Versailles-Saint-Quentin-en-Yvelines	Examineur
Benjamin Vest Maître de conférence, Institut d'Optique Graduate School	Invité
Jean-Jacques Greffet Professeur, Institut d'Optique Graduate School	Directeur de thèse

À Jean-Pierre

Sommaire

1	Introduction au contrôle de l'émission spontanée par des structures résonantes	1
2	Couplage fort	29
3	Étude de la photoluminescence d'une assemblée de nano-plaquettes couplée à un mode plasmonique	45
4	Étude de la photoluminescence d'une assemblée de boîtes quantiques couplée à un mode guidé	65
	Bilan et perspectives	93
	Bibliographie	97
	Table des matières	103

Introduction au contrôle de l'émission spontanée par des structures résonantes

Nous nous intéressons dans cette thèse au contrôle de l'émission de lumière d'une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à une structure résonante. Nous allons introduire un nouveau cadre théorique permettant la description et la compréhension de l'émission de lumière par ce type de système, et nous allons par la suite, dans ce nouveau cadre théorique, concevoir des sources de lumières aux propriétés contrôlées.

Quels modèles existe-t-il pour décrire l'émission de lumière d'un système par émission spontanée ? Kirchhoff établit en 1860 [KIRCHHOFF 1978] que la luminance d'un corps à l'équilibre thermodynamique à température T , c'est-à-dire le flux émis dans une direction donnée par unité de surface et d'angle solide, est le produit de l'émissivité de ce corps et de la luminance d'un corps noir de même température. A l'équilibre thermodynamique, Kirchhoff montre que l'émissivité de ce corps est égale à son absorptivité. Planck montre 40 ans plus tard que cette luminance de corps noir est une fonction qui ne dépend que de la température, appelée par la suite loi de Planck. Les lois de Kirchhoff et de Planck permettent de décrire l'émission de lumière par de la matière condensée à l'équilibre thermodynamique, et permettent ainsi de modéliser l'émission thermique (ampoules incandescentes, étoiles...), la photoluminescence et l'électroluminescence (LEDs).

La description d'un atome par un système à deux niveaux permet de comprendre l'émission de lumière d'un atome dans le vide comme étant similaire au rayonnement d'un dipôle oscillant dont le temps caractéristique d'émission est directement relié au moment dipolaire associé. Ce modèle de dipôle permet de décrire l'émission de lumière dans le vide de tout objet pouvant s'apparenter à un système à deux niveaux, tel que les boîtes quantiques, les molécules de colorants ou encore les centres NV du diamant.

Purcell découvre en 1946 [PURCELL 1995] qu'il est possible de modifier le temps caractéristique d'émission d'un atome en contrôlant son environnement. Plus géné-

ralement, plusieurs groupes de recherche se sont intéressés au contrôle des propriétés d'émission de lumière de ces émetteurs uniques par des cavités et des antennes. Haroche [GOY et al. 1983] a observé une réduction du temps caractéristique d'un atome de Rydberg en le plaçant dans une cavité supraconductrice, Weisbuch [WEISBUCH et al. 1992] a observé une modification spectrale de l'émission de puits quantiques en régime de couplage fort avec une microcavité optique, van Hulst [CURTO et al. 2010] a contrôlé la direction d'émission de lumière d'une boîte quantique en la couplant à une nano-antenne de type Yagi-Uda. C'est l'électrodynamique quantique en cavité qui permet de décrire l'émission de lumière de ce genre de systèmes composés d'un émetteur unique couplé à une cavité.

Plus récemment, différentes équipes de recherche, ainsi que des groupes industriels se sont intéressés à l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs en cavité. Le groupe de Gomez-Rivas [LOZANO et al. 2013] a déposé un ensemble de molécules de colorants sur un réseau périodique de particules d'aluminium, et a montré que la puissance émise par cette source, intégrée sur l'ensemble du spectre d'émission, était 14 fois supérieure à la puissance mesurée émise par une simple couche de molécules de colorants. Il observe par ailleurs une directivité de l'émission de lumière de leur système qu'ils expliquent par une augmentation de la cohérence spatiale des émetteurs. Le groupe de Weitz [KLAERS et al. 2010] a placé des molécules de colorants dans une cavité optique, et a réussi à obtenir un condensat de Bose-Einstein de photons. Le groupe de Norris [DE LEO et al. 2017] a placé des boîtes quantiques sur des réseaux 1D d'argent, et a réussi à obtenir une émission polarisée du système.

Ces nouvelles sources de lumières composées d'assemblées d'émetteurs atteignent des puissance d'émission suffisantes pour envisager leur utilisation dans des applications commerciales, comme les nouveaux écrans utilisant la technologie Q-LED, où chaque pixel est composé d'ensembles de boîtes quantiques émettant dans le rouge, dans le vert et dans le bleu. Par ailleurs, il est possible de modifier les propriétés d'émissions de ces assemblées d'émetteurs comme la directivité, la polarisation ou bien le spectre d'émission en les plaçant dans des structures résonantes.

Jusqu'alors, le modèle théorique permettant d'interpréter les mesures expérimentales d'émission de ces sources était de considérer que l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs résultait de la somme incohérente de l'émission de chacun des émetteurs. Cette conception n'est pas suffisante pour expliquer un certain nombre de

	Émetteur unique	Assemblée thermalisée d'émetteurs
Émission dans le vide	<p>Système à 2 niveaux</p> <p>Émission dipolaire</p>	<p>Loi de Kirchhoff</p> <p>Émission thermique</p> <p>Électroluminescence</p> <p>Photoluminescence</p>
Émission en cavité	<p>Electrodynamique quantique en cavité</p> <p>Effet Purcell</p> <p>Couplage fort</p>	<p>Loi de Kirchhoff généralisée</p> <p>Émission thermique en cavité</p> <p>Électroluminescence en cavité</p> <p>Photoluminescence en cavité</p>

FIGURE 1.1 – Tableau récapitulatif des modèles d'émission de lumière utilisés pour des émetteurs uniques ou des assemblées d'émetteurs, placés dans le vide ou en cavité.

résultats expérimentaux, et n'est pas adaptée à l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs dans une structure résonante. Nous allons introduire dans ce chapitre un nouveau cadre théorique permettant la description de l'émission de lumière de ce nouveau type de sources, permettant de comprendre comment la structure résonante permet de modifier les propriétés d'émissions du système. Ce modèle de Kirchhoff généralisé est le point de départ du contrôle des propriétés d'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs thermalisée couplée à une structure résonante.

I. Émission de lumière par un émetteur unique

Nous allons ici nous intéresser en premier lieu au processus d'émission de lumière d'un émetteur unique dans le vide, puis nous verrons dans un second temps les modifications de cette émission de lumière quand l'émetteur est placé dans un environnement spécifique.

A. Émetteur unique dans le vide

Nous allons voir dans cette partie les processus d'interaction entre un émetteur et le champ électromagnétique.

A.1. Mécanismes d'interactions d'un émetteur unique avec une onde électromagnétique dans le vide

Considérons un émetteur unique, par exemple un atome, dont l'hamiltonien \widehat{H} admet des états propres $|g\rangle$, $|e\rangle$ d'énergies respectives E_g , E_e avec $|g\rangle$ le niveau fondamental de l'atome et $|e\rangle$ le premier niveau d'énergie. Considérons une onde électromagnétique monochromatique de phase nulle incidente dont le champ électrique s'écrit :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \cos \omega t \quad (1.1)$$

avec $\omega = \frac{E_e - E_g}{\hbar}$.

Il existe 3 mécanisme d'interaction entre l'atome et le champ :

- Si l'atome est initialement dans l'état fondamental $|g\rangle$, alors il peut absorber une excitation du champ incident \vec{E} , c'est à dire un photon, et passer dans l'état excité $|e\rangle$. C'est le mécanisme d'absorption (Fig 1.2.a).
- Si l'atome est initialement dans l'excité $|e\rangle$, alors sous l'effet du champ incident \vec{E} , il peut se désexciter vers le niveau fondamental $|g\rangle$ en émettant un photon à la fréquence ω . Ce photon émis vient donc amplifier le champ incident \vec{E} . On parle ici d'émission induite (Fig 1.2.b).
- Enfin, si l'atome est initialement dans l'état excité $|e\rangle$, il peut naturellement se désexciter vers le niveau fondamental $|g\rangle$ en l'absence de rayonnement incident. Le photon résultant est émis à la fréquence ω , dans une direction et avec une phase et une polarisation aléatoire. C'est le processus d'émission spontanée (Fig 1.2.c).

C'est plus particulièrement au mécanisme d'émission spontanée que nous allons nous intéresser. Le mécanisme de désexcitation de l'atome de l'état $|e\rangle$ vers l'état $|g\rangle$ est un processus aléatoire dont la probabilité d'occurrence par unité de temps est

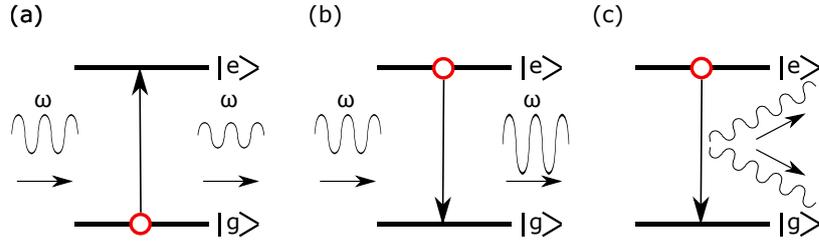


FIGURE 1.2 – (a) Schéma de l’absorption d’un photon par un atome. (b) Schéma de l’émission induite ou stimulée d’un photon par un atome. (c) Schéma de l’émission spontanée d’un photon par un atome.

notée Γ_{sp} . Ainsi, si l’atome est dans l’état excité $|e\rangle$ à $t = 0$, alors la probabilité que cet atome reste dans cet état excité $|e\rangle$ à l’instant t est $P_e = e^{-\Gamma_{sp}t}$. La grandeur $\tau_{sp} = \frac{1}{\Gamma_{sp}}$ représente donc la durée de vie radiative de l’état excité $|e\rangle$.

Pour trouver l’expression de Γ_{sp} , il faut aborder le problème avec une description quantique. Γ_{sp} représente la probabilité de passer d’une configuration avec une excitation stockée dans l’atome, et les modes électromagnétiques de l’environnement, ici le vide, totalement dépeuplé, à une configuration sans excitations dans l’atome, avec un des modes du vide peuplé par une excitation. Γ_{sp} représente donc la probabilité de passer de l’état initial $|i\rangle = |e\rangle \times |0, 0, 0, \dots, 0\rangle$ à un état final du type $|f\rangle = |g\rangle \times |0, 1, 0, \dots, 0\rangle$. C’est la règle d’or de Fermi qui permet de calculer le taux de desexcitation d’une transition couplée (émetteur) couplé à un continuum de niveaux d’énergies (ici les modes du vides).

$$\Gamma_{i \rightarrow f} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H' | i \rangle|^2 \rho \quad (1.2)$$

avec $H' = -\vec{p} \cdot \vec{E}$ l’hamiltonien d’interaction entre l’atome et le champ électrique et ρ la densité d’état de l’état final, c’est à dire du vide dans ce cas ($\rho = \rho_0$). Le calcul montre que [GRYNBERG et al. 1997]

$$\Gamma_{sp} = \Gamma_{i \rightarrow f} = \frac{1}{3\pi\epsilon_0} \frac{\omega^3 |\vec{p}|^2}{\hbar c^3} \quad (1.3)$$

avec \vec{p} le moment dipolaire associé à la transition considérée.

A.2. Tenseur de Green

Nous allons tout d’abord introduire le tenseur de Green $\mathbf{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ qui permet de relier le champ électrique en un point \vec{r} de l’espace à une distribution de courant [AGIO et al. 2013] $\vec{j}(\vec{r}_0)$ en un point \vec{r}_0 (Fig 1.3) :

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = i\mu_0\omega \int_V \mathbf{G}(\vec{r}, \vec{r}', \omega) \cdot \vec{j}(\vec{r}', \omega) d^3\vec{r}' \quad (1.4)$$

Ce tenseur de Green prend en compte l'ensemble des propriétés optiques et géométriques de la source et de l'environnement, ainsi que la position à laquelle nous voulons connaître le champ électrique.

Ici, nous considérons un dipôle unique (l'atome) dans le vide. Ainsi, la distribution de courant devient $\vec{j}(\vec{r}_0) = -i\omega\vec{p}\delta(\vec{r} - \vec{r}_0)$ On trouve ainsi

$$\vec{E}(\vec{r}, \omega) = -\mu_0\omega^2 \mathbf{G}_0(\vec{r}, \vec{r}_0, \omega) \vec{p} \quad (1.5)$$

avec $\mathbf{G}_0(\vec{r}, \vec{r}_0, \omega)$ le tenseur de Green dans le vide.

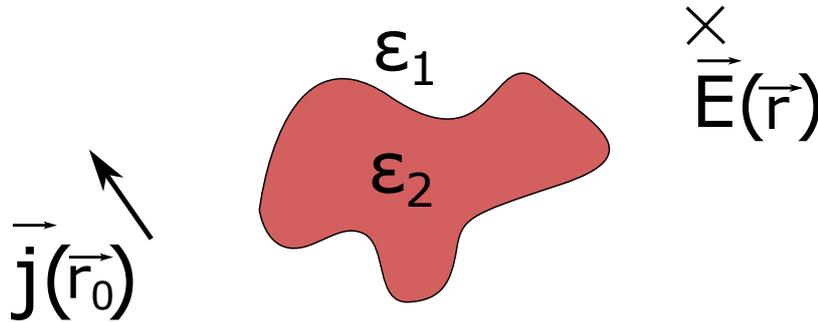


FIGURE 1.3 – Une distribution de courant est placée en \vec{r}_0 et rayonne dans un environnement de permittivité diélectrique ϵ_1 et ϵ_2 . Le tenseur de Green permet de déterminer le champ électrique en n'importe quel point de l'espace \vec{r}

Comme nous l'avons vu dans la formule 1.2, le taux d'émission spontanée d'un dipôle dans un environnement donné est proportionnel à la densité d'états de cet environnement. Par ailleurs, nous avons vu que le tenseur de Green rend compte des propriétés optiques d'un environnement. Ainsi, la densité d'état et le tenseur de Green sont reliés par la formule suivante [JOULAIN et al. 2005]

$$\rho(\vec{r}, \omega) = \frac{2\omega}{\pi c^2} \text{Im}[\mathbf{G}(\vec{r}, \vec{r}, \omega)] \quad (1.6)$$

B. Émetteur unique dans un environnement

B.1. Modification du temps de vie de l'émetteur

C'est en s'intéressant à l'émission de rayonnement dans les fréquences radio d'une transition nucléaire magnétique d'un atome, que dans les années 1940, Purcell découvre que le taux d'émission spontanée d'un atome peut être modifié par son environnement. En effet, en couplant cet atome à une cavité micro-onde, le temps de vie de la transition passe de 5.10^{21} s dans le vide à quelques minutes.

Cette modification de la durée de vie radiative de l'état excité d'un émetteur par le couplage à une cavité, appelée effet Purcell, est caractérisée par le facteur de Purcell

$$F_p = \frac{\Gamma_{ant}}{\Gamma_0} \quad (1.7)$$

avec Γ_{ant} le taux d'émission spontanée de l'émetteur couplé à une cavité et Γ_0 le taux d'émission spontanée sans couplage. Ainsi, si $F_p > 1$, le taux d'émission spontanée du système couplé est plus grand que celui de l'émetteur seul, et si $F_p < 1$, le taux d'émission spontanée du système couplé est plus faible que celui de l'émetteur seul.

Si l'émetteur est couplé à la cavité, alors ce facteur de Purcell est totalement déterminé par les paramètres de la cavité tel que :

$$F_p = \frac{3}{4\pi^2} \frac{Q}{V} \left(\frac{\lambda}{n} \right)^3 \quad (1.8)$$

avec Q le facteur de qualité de la cavité, V le volume de la cavité, λ la longueur d'onde de la transition considérée et n l'indice optique du milieu dans lequel est l'émetteur.

Depuis Purcell, de nombreux groupes de recherche ont exploité ce phénomène afin d'accélérer ou d'inhiber l'émission de lumière de différents types d'émetteurs avec toutes sortes de cavités. Le groupe de Kolchin a obtenu un facteur de Purcell $F_p = 31$ en couplant une boîte quantique à un mode diélectrique guidé (Fig 1.4.a), le groupe de Senellart a obtenu un facteur de Purcell $F_p = 3$ en couplant une boîte quantique à un micro-pilier de semi-conducteur (Fig 1.4.b), le groupe de Gallego a obtenu un facteur de Purcell de $F_p = 190$ en couplant un atome de rubidium à une micro-cavité réalisée à partir de fibres optiques (Fig 1.4.c). Le concept de facteur de Purcell peut

même s'étendre au domaine des ondes acoustiques, comme cela est montré dans la figure 1.4.d, où le group de Landi a couplé un émetteur d'ondes acoustiques (ici un haut parleur) à une cavité résonante composée de zig-zag en bois, et a obtenu un facteur de Purcell de 120. Enfin, l'équipe de Hullet a réussi à allonger le temps de vie d'une transition d'un atome de Rydberg d'un facteur 20 ($F_p = 0.05$) en plaçant cet atome entre 2 plaques métalliques [HULET et al. 1985].

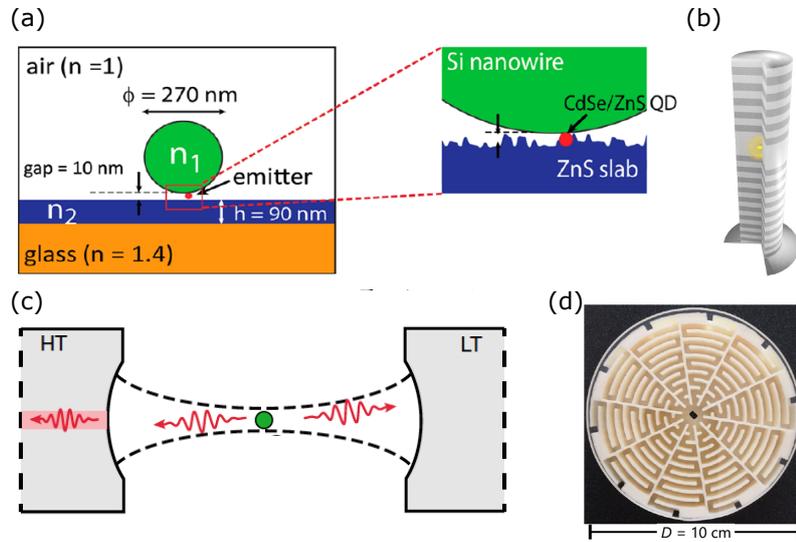


FIGURE 1.4 – (a) Boîte quantique unique couplée à un mode guidé diélectrique [KOLCHIN et al. 2015] (b) Boîte quantique intégrée dans un micro-pilier comportant deux miroirs de Bragg [MUNSCH et al. 2009] (c) Atome de Rubidium au sein d'une cavité composée de 2 sections légèrement creusées de fibres optiques. [GALLEGO et al. 2018] (d) Haut parleur au centre d'une cavité acoustique en bois [LANDI et al. 2018]

Comme nous pouvons le voir dans l'équation 1.2, le taux d'émission spontanée est proportionnel à la densité d'état de l'état final. L'effet Purcell est dû à une augmentation de la densité d'état offert par la cavité à résonance. Ainsi, il peut s'écrire :

$$F_p = \frac{\rho}{\rho_0} = \frac{\text{Im}[\mathbf{G}(\vec{r}, \vec{r}, \omega)]}{\text{Im}[\mathbf{G}_0(\vec{r}, \vec{r}, \omega)]} \quad (1.9)$$

avec ρ et ρ_0 les densités d'états de la cavité et du vide.

B.2. Modification de la directivité et de la polarisation d'émission

Il est aussi possible de modifier les directions d'émission de lumière d'un émetteur, ainsi que sa polarisation d'émission, en le couplant à une nano-antenne.

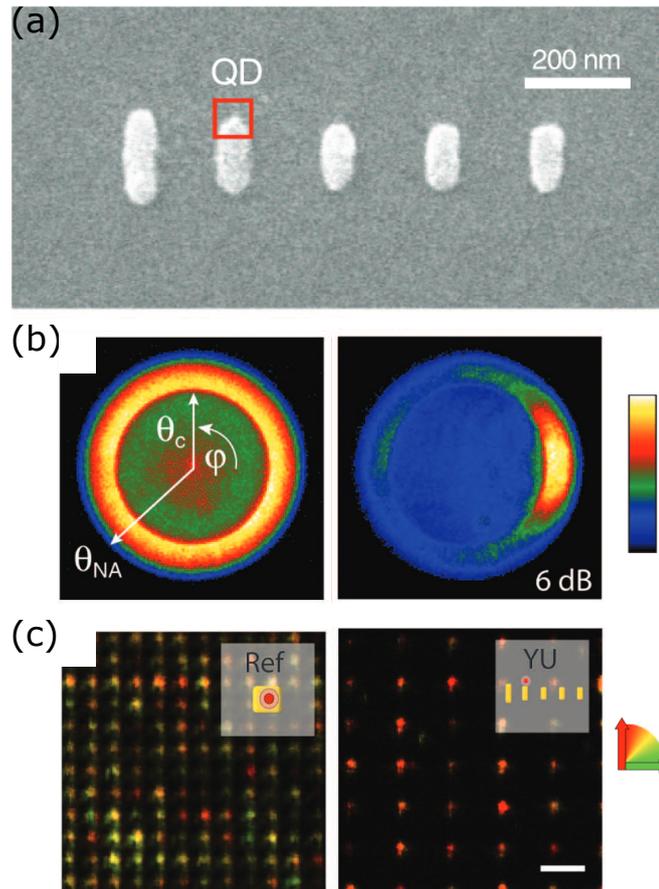


FIGURE 1.5 – (a) Image prise au microscope électronique à balayage (MEB) de l'antenne Yagi-Uda avec en rouge la position de la boîte quantique.(b) Distribution de l'intensité mesurée dans le plan focal arrière de l'objectif de collection pour une boîte quantique seule (gauche), et une boîte quantique couplée à une nano-antenne Yagi-Uda (droite).(c) Mesure du degré e polarisation linéaire de l'émission de lumière de boîtes quantiques seules (gauche) et couplées avec des nano-antennes de Yagi-Uda (droite). [CURTO et al. 2010]

L'équipe de van Hulst s'est intéressée à l'émission de lumière d'une boîte quantique couplée à une nano-antenne de type Yagi-Uda, composée de 5 bâtonnets métalliques. Une boîte quantique est placée a l'extrémité du deuxième bâtonnet (Fig 1.5.a) et

est pompée par un laser hélium-néon polarisé circulairement à 633 nm, et la lumière émise par le système est collectée par un objectif de microscope. La distribution d'intensité dans le plan focal arrière de l'objectif est montrée dans la figure 1.5.b pour l'émission de lumière d'une boîte quantique seule et pour une boîte quantique couplée avec la nano-antenne Yagi-Uda. Cette distribution d'intensité dans le plan focal arrière de l'objectif nous renseigne sur les directions d'émission du système considéré, et nous montre que le système couplé émet de la lumière dans une direction privilégiée en comparaison avec l'émission de lumière par la boîte quantique seule. Le degré de polarisation linéaire de l'émission de lumière par plusieurs boîtes quantique et plusieurs boîtes quantiques couplées à des antennes Yagi-Uda est montré dans la figure 1.5.c. Nous pouvons voir que la lumière émise par les boîtes quantiques couplées est polarisée verticalement (dans la même orientation que les bâtonnets métalliques) alors que la lumière émise par les boîtes quantiques seules n'est pas polarisée.

Pour comprendre le rôle d'une nano-antenne, d'une cavité, ou d'une structure résonante, nous pouvons considérer le rôle de la caisse de résonance dans l'émission d'ondes acoustiques par une corde de guitare [GREFFET 2005]. En effet, sans caisse de résonance, les cordes d'une guitare ne produisent que très peu de son, c'est à dire que la puissance acoustique délivrée par les cordes est faible car les ondes acoustiques se couplent mal aux modes de l'espace libre. La caisse de résonance peut être vue comme un résonateur dont le couplage avec la source (les cordes) et avec les modes de l'espace libre (l'air) est efficace, ce qui permet à la guitare dans son ensemble d'émettre plus de son. Nous ne ferons ainsi pas de différence entre une antenne, une cavité, un résonateur, une structure résonante Ces objets sont considérés comme des intermédiaires permettant d'un côté de coupler des émetteurs aux modes propres d'un résonateur et d'un autre côté de coupler ces modes propres aux modes du vide. Un résonateur permet ainsi une meilleure extraction de l'énergie des émetteurs, et cette énergie extraite peut peupler des modes du vide dont le vecteur d'onde et la polarisation sont déterminés par la qualité du couplage entre ces modes particuliers du vide, et les modes de ce résonateur. En d'autres mots, un résonateur permet d'augmenter la puissance émise par des émetteurs, et permet de contrôler les directions d'émission ainsi que la polarisation d'émission de lumière d'émetteurs.

II. Émission de lumière par une assemblée d'émetteurs thermalisés en cavité

Nous avons vu dans la partie précédente les processus élémentaires de l'émission de lumière par un émetteur unique dans le vide, puis en présence d'un résonateur. Nous allons maintenant, dans un premier temps, définir ce qu'est la thermalisation, puis dans un second temps, nous allons décrire l'émission de lumière d'émetteurs thermalisés en cavité

A. Émetteurs thermalisés

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, quand nous ne considérons qu'un unique émetteur réductible à un système à 2 niveaux, nous traitons la question de l'émission de lumière en considérant un niveau excité qui se relaxe vers un état d'énergie fondamental en émettant un photon. Quand il s'agit de décrire l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs, que ce soit une molécule complexe, une assemblée de boîtes quantiques, ou des électrons dans un métal, il faut utiliser une description statistique pour rendre compte des nombreux états d'énergies du système.

Nous allons distinguer ici deux situations. Dans la première, nous considérons une assemblée d'émetteurs séparés les uns des autres, qui ne peuvent ni interagir entre eux, c'est à dire s'échanger de l'énergie, ni interagir avec leur environnement. La description de l'émission de lumière d'un tel système se ramène à l'addition incohérente de l'émission de lumière de chaque système à 2 niveaux composant le système.

Dans la seconde situation, nous considérons une assemblée d'émetteurs qui peuvent soit interagir avec un environnement commun, comme des molécules dans un solvant, soit qui sont suffisamment proches les uns des autres pour qu'il y ait échange d'énergie entre 2 émetteurs voisins. C'est cette dernière configuration que nous allons étudier, et nous allons considérer par la suite que du fait des possibles interactions entre les émetteurs eux même, ou avec un environnement commun, les émetteurs vont pouvoir

atteindre un régime d'équilibre thermodynamique local.

Si l'on considère une assemblée d'émetteurs, le spectre d'émission de cet ensemble ne peut pas être décrit par un système à deux niveaux. Pour une assemblée de molécules, il y a un grand nombre de niveaux d'énergie rovibrationnels. Pour une assemblée de boîtes quantiques, du fait de la distribution en taille de ces boîtes quantiques, il y a un élargissement inhomogène du spectre d'émission de l'ensemble par rapport à une boîte quantique unique. Par conséquent, en passant d'un émetteur unique à une assemblée, le modèle pertinent est constitué de deux niveaux élargis, formant 2 bandes, dont le spectre d'émission est élargi. (Fig 1.6).

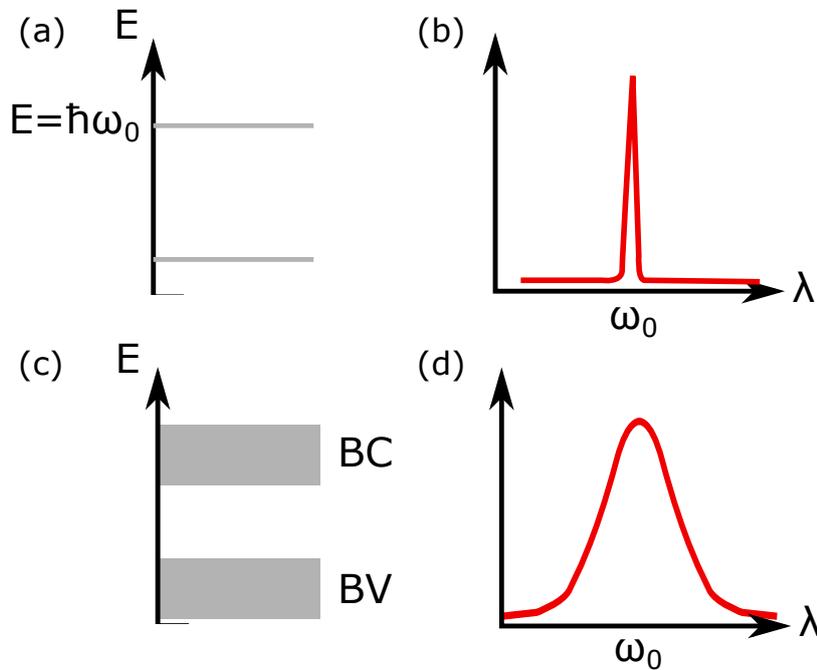


FIGURE 1.6 – (a) Structure en niveaux d'énergie d'un système à 2 niveaux (b) Spectre d'émission d'un système à 2 niveaux (c) Structure en bandes d'énergie d'une assemblée de boîtes quantiques. (d) Spectre d'émission élargi

Ainsi, nous adoptons une description des états énergétiques de ce genre de systèmes similaire à celle pour décrire les bandes d'énergies d'un semi-conducteurs. Nous distinguerons donc 2 bandes d'énergie, une bande de valence et une bande de conduction.

Comme nous l'avons dit précédemment, nous allons utiliser une description statistique, et donc nous allons nous intéresser à la distribution d'occupation de ces états

d'énergies par les électrons du système.

Considérons une assemblée de boîtes quantiques illuminée par une impulsion laser de 100 fs à l'instant $t = 0$ s. Juste avant l'impulsion, le système est au repos, à température ambiante. Les électrons dans le système occupent les états disponibles en suivant une distribution de Fermi-Dirac (Fig 1.7.a) :

$$n_{FD}(E) = \frac{1}{\exp \frac{E-E_f}{k_B T} + 1} \quad (1.10)$$

avec $n_{FD}(E)$ le taux d'occupation par les électrons à l'énergie E , E_f l'énergie de Fermi du système, k_B la constante de Boltzmann et T la température du système (ici $T=300\text{K}$).

À $t = 0^+$, le système a absorbé une partie de l'impulsion. Cela a pour conséquence de promouvoir soudainement un nombre d'électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. De ce fait, la distribution des électrons sur les états énergétiques du système change brutalement et devient athermale (Fig 1.7.b).

Après un certain temps τ_{therm} , les interactions électrons-électrons ou électrons-phonons permettent de restaurer un équilibre thermodynamique local des électrons dans la bande de conduction. Dans le cas où ce processus est bien plus rapide que le temps caractéristique de recombinaison électron-trou, c'est à dire quand $\tau_{therm} \ll \tau_{e-t}$, les électrons vont suivre à nouveau une distribution de Fermi-Dirac, mais dont l'énergie moyenne est plus élevée que précédemment (Fig 1.7.c) :

$$n_{FD-therm}(E) = \frac{1}{\exp \frac{E-\mu_c}{k_B T} + 1} \quad (1.11)$$

avec μ_c le quasi-niveau de Fermi des électrons dans la bande de conduction.

Ce quasi-niveau de Fermi μ_c est relié au nombre d'électrons promu de la bande de valence à la bande de conduction N_e par la formule suivante :

$$N_e = \int_{BC} \rho(E) \frac{1}{\exp \frac{E-\mu_c}{k_B T} + 1} dE \quad (1.12)$$

Enfin si l'on considère que le nombre d'électrons N_e promus de la bande de valence à la bande de conduction est proportionnel au nombre de photons absorbés, alors μ_c est directement relié à la puissance de pompe apportée au système.

Tout le raisonnement établi sur l'évolution de la distribution des électrons sur les niveaux d'énergie du système s'applique aussi aux trous, qui dans l'hypothèse

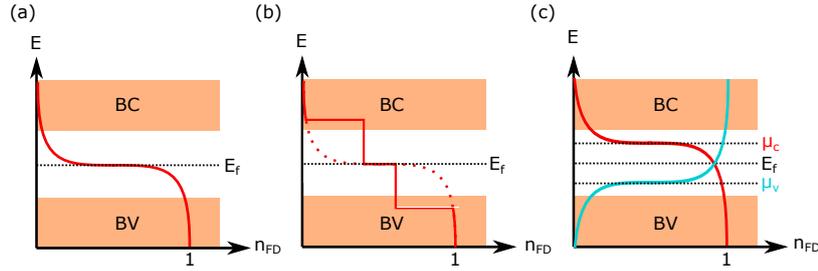


FIGURE 1.7 – (a) Le système est au repos, et les électrons se répartissent selon une distribution de Fermi-Dirac à température ambiante (b) Après avoir absorbé une impulsion, des électrons sont promus dans la bande de conduction et s’organisent selon une distribution dite athermale (c) Après thermalisation, les trous et les électrons se répartissent selon des distributions de Fermi-Dirac dans la bande de valence et dans la bande de conduction

$\tau_{therm} \ll \tau_{e-t}$, se répartiront selon la distribution suivante (Fig 1.7.c) :

$$n_{FD-therm-trous}(E) = 1 - \frac{1}{\exp \frac{E-\mu_v}{k_B T} + 1} \quad (1.13)$$

avec μ_v le quasi-niveau de Fermi des trous dans la bande de valence.

Une fois que les électrons et les trous se répartissent selon les distributions montrées, le processus de recombinaison électron-trou est à l’origine de l’émission de lumière par l’assemblée.

Revenons sur l’hypothèse principale permettant d’établir l’existence de ces distributions d’électrons et de trous dans le système : $\tau_{therm} \ll \tau_{e-t}$. Dire que l’assemblée d’émetteurs est thermalisée revient à considérer que :

- les électrons sont thermalisés et se répartissent selon une distribution de Fermi-Dirac dans la bande de conduction, et qu’il est possible de définir une température T et un quasi-niveau de Fermi μ_c .
- les trous sont thermalisés et se répartissent selon une distribution de Fermi-Dirac dans la bande de valence, et qu’il est possible de définir une température T et un quasi-niveau de Fermi μ_v .

Cette thermalisation des électrons d’une part, et des trous d’autre part ne peut avoir lieu que si les mécanismes permettant d’établir ces équilibres locaux sont plus rapides que le mécanisme d’émission de lumière de recombinaison électron-trou. Regardons quelques exemples dans lesquels cette hypothèse est vérifiée. Si l’on considère une assemblée de molécules de colorant (Nile Blue) en solution éclairée par une impulsion laser à $t=0$, le temps caractéristique de transfert d’énergie des molécules au

solvant, donc de thermalisation du système est de 4 ps [MOKHTARI et al. 1990], tandis que le temps caractéristique de recombinaison radiative est de l'ordre de la nanoseconde. Pour une assemblée dense de boîtes quantiques, les boîtes quantiques peuvent interagir entre elles via des interactions dipôles-dipôles, et ce processus se passe aussi en quelques picosecondes, tandis que les temps caractéristiques de recombinaison électron-trou de ce type de systèmes sont de l'ordre de la picoseconde.

Enfin, dans cette description et dans cette hypothèse, la méthode d'excitation du système n'importe pas. En effet, que l'on vienne chauffer le système, qu'on l'éclaire, ou que l'on vienne le pomper électriquement, la démarche est la même. De l'énergie est apportée au système, les électrons et les trous se thermalisent dans un premier temps, puis se recombinent dans un second temps. Dans le cadre de l'émission thermique, seul le paramètre de température imposée au système va affecter la distribution des électrons et des trous, dans le cadre de la photoluminescence et de l'électroluminescence, ce sont les quasi-niveaux de Fermi et la température T qui vont décrire la distribution des électrons et des trous.

Ainsi, décrire l'émission de lumière d'une assemblée dense d'émetteurs dans la situation où les mécanismes de thermalisation de ces derniers sont plus rapides que le mécanisme de recombinaison électron-trou revient à décrire l'émission de lumière par de la matière condensée thermalisée, caractérisée par les grandeurs T , μ_c et μ_v .

B. Émission de lumière en cavité

Comprendre l'émission de lumière par de la matière condensée, c'est d'une part comprendre les processus de création de photons par la matière, mais c'est d'autre part comprendre comment ces photons arrivent à sortir du système. Si l'on considère une couche de semi-conducteur dans le vide, certains photons vont sortir de la couche tandis que d'autres seront réfléchis à l'interface semi-conducteur/vide et n'émergeront donc pas de la structure. Il suffit ici d'introduire un coefficient de transmission pour rendre compte du rayonnement pouvant émerger de la structure, mais qu'en est-il quand l'environnement est plus complexe? Comment peut-on traiter ce problème d'extraction des photons si l'on place une assemblée d'atomes dans une cavité Fabry-Perot? Ou une assemblée de boîtes quantiques sur un résonateur plasmonique? Dans les situations où la cavité est macroscopique, une approche d'optique géométrique peut suffire, mais si les objets sont plus petits que la longueur d'onde d'intérêt, cette

approche ne fonctionne plus.

Pour traiter ce genre de situations, nous allons considérer 2 étapes. Une première étape où l'assemblée d'émetteur relâche son énergie dans les modes électromagnétiques du résonateur, et une seconde étape où ce sont ces modes de résonateur qui en se couplant aux modes électromagnétiques du vides, vont émettre de la lumière.

B.1. Émission de lumière par les courants fluctuants

Tout d'abord, intéressons nous à l'émission de lumière par un système thermalisé dans le cadre de l'électrodynamique fluctuationnelle introduit par Rytov [RYTOV 1959]. Dans ce modèle, ce sont des courants fluctuants $\vec{j}(\vec{r}, t)$ qui sont à l'origine de l'émission de lumière. Même si la moyenne dans le temps de ces courants est nulle, ces courants ont des fluctuations qu'il est possible d'exprimer en fonction notamment des paramètres de température et des quasi niveaux de Fermi du système grâce au théorème de fluctuation-dissipation :

$$\langle j_m(\vec{r}, t) j_n(\vec{r}', t) \rangle = 2\omega\epsilon_0 \text{Im}[\epsilon(\vec{r}', \omega, \mu(\vec{r}', t))] \frac{\hbar\omega}{\exp\left(\frac{\hbar\omega - \mu(\vec{r}', t)}{k_B T(\vec{r}', t)}\right) - 1} \delta(\vec{r} - \vec{r}') \delta_{nm} \quad (1.14)$$

avec $\mu = \mu_c - \mu_v$, le potentiel chimique de radiation du système au point \vec{r}' à l'instant t , introduit par Wurfel [WURFEL 1982], $\epsilon(\vec{r}', \omega, \mu(\vec{r}', t))$ la permittivité diélectrique du système thermalisé, $T(\vec{r}', t)$ la température du système au point \vec{r}' à l'instant t .

Arrêtons nous sur le potentiel chimique de radiation $\mu(\vec{r}', t)$. Cette grandeur est reliée à la méthode d'excitation du système. En effet, si le système est chauffé, alors nous sommes dans la situation bien connue de l'émission thermique, et c'est uniquement la température qui régit l'émission de lumière du système. Nous avons donc $\mu(\vec{r}', t) = 0$. Si l'on considère une LED, c'est à dire un morceau de semi-conducteur placé entre 2 électrodes, nous sommes dans le cadre de l'électroluminescence, et $\mu(\vec{r}', t)$, qui est la différence des quasi-niveaux de Fermi, est directement relié à V , la tension appliquée entre les 2 électrodes, par $\mu = \mu_c - \mu_v = eV$. Enfin, comme nous l'avons vu précédemment, dans le cadre de la photoluminescence, la puissance de pompe est reliée

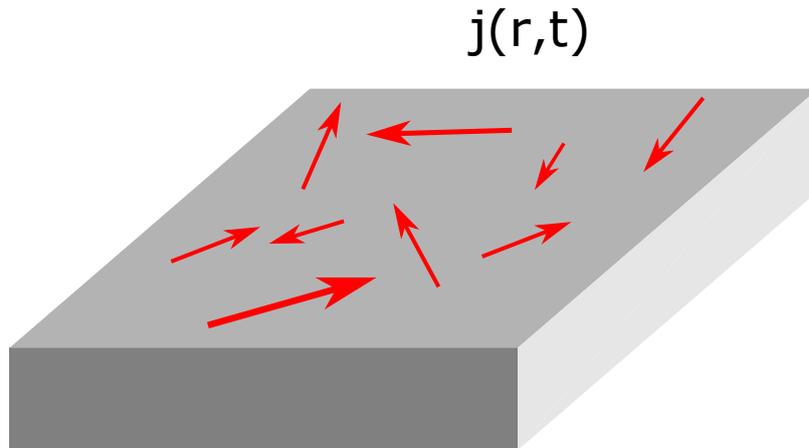


FIGURE 1.8 – Courants fluctuants aléatoires à la surface d'un morceau de matière condensé thermalisé.

aux quasi-niveaux de Fermi, donc à $\mu(\vec{r}^j, t)$.

Par ailleurs, remarquons que les quantités $T(\vec{r}^j, t)$ et $\mu(\vec{r}^j, t)$ dépendent du temps. En effet, si l'on considère une impulsion laser absorbée par un morceau de semi-conducteur, le quasi niveau de Fermi des électrons va dans un premier temps croître après l'absorption des photons par le matériel, puis va tendre vers 0 car les électrons vont se recombiner avec les trous. De même, le système va chauffer localement puis se refroidir pour atteindre la température ambiante. On peut également noter que ces quantités dépendent de l'espace. Ainsi, dans le cas d'un puits quantique, le potentiel chimique n'est défini que dans le volume du puits quantique. Si l'on crée une structure résonante, c'est à cet endroit que la valeur du champ électromagnétique sera importante.

Maintenant que nous savons comment ce système thermalisé émet de la lumière, il faut regarder comment cette lumière sort de la cavité, c'est à dire comment ce système thermalisé se relaxe dans les modes du résonateur, et comment ce résonateur rayonne.

B.2. Couplage du système thermalisé au résonateur et émission de lumière du système

Nous allons établir dans cette partie la formule permettant de décrire l'émission de lumière d'un système thermalisé couplé à un résonateur.

Considérons un système composé d'une assemblée d'émetteurs couplée à un ré-

sonateur, de taille finie. Cela peut-être une cavité Fabry-Perot remplie de molécules de colorants, ou une couche de boîtes quantiques sur un réseau métallique. Si on illumine le système avec une onde plane dont la direction de propagation est portée par le vecteur \vec{u} , dans la polarisation l , et dont la fréquence est ω , alors nous pouvons écrire que la puissance absorbée par le système est de la forme

$$P_{Abs}(\vec{u}, l, \omega) = \sigma_{Abs}(\vec{u}, l, \omega) \frac{\epsilon_0 c |E_{Inc}(\omega)|^2}{2} \quad (1.15)$$

avec $\sigma_{Abs}(\vec{u}, l, \omega)$ la section efficace d'absorption du système et $\frac{\epsilon_0 c |E_{Inc}(\omega)|^2}{2}$ le flux du vecteur de Poynting associé à l'onde plane incidente. La section efficace d'absorption ne nous renseigne pas sur la répartition spatiale de l'absorption dans le système. En effet, si l'on considère une cavité Fabry-Perot remplie de colorant, l'absorption dans ce système n'est pas homogène. L'absorption sera plus grande dans les ventres du mode que dans les noeuds, le champ n'étant pas homogène dans le système. Ainsi, il est nécessaire d'introduire un taux d'absorption local $\alpha(\vec{r}, \vec{u}, l, \omega)$ tel que :

$$\sigma_{Abs}(\vec{u}, l, \omega) = \iiint \alpha(\vec{r}, \vec{u}, l, \omega) d^3\vec{r} \quad (1.16)$$

Ce taux d'absorption local mesure donc l'absorption du système au point \vec{r} pour une onde plane dont la direction de propagation est portée par le vecteur \vec{u} , dans la polarisation l , et dont la fréquence est ω . En d'autres mots, cette quantité permet de quantifier le couplage d'une onde plane avec le résonateur en tout point du système.

Intéressons nous maintenant à la puissance émise par un tel système après que celui ci ait été pompé. La puissance émise par le système est donnée par le flux du vecteur de Poynting $\vec{\Pi}$ à travers une surface dA orthogonale au vecteur \vec{u} :

$$dP_e = \langle \vec{\Pi}(\vec{r}, t) \cdot \vec{u} \rangle dA \quad (1.17)$$

A partir des équations 1.17, 1.4 et 1.14, et en réalisant un développement en ondes planes du champ \vec{E} et du tenseur de Green \mathbf{G} [GREFFET et al. 2018], il est possible de montrer que la puissance émise par un tel système dans un angle solide $d\Omega$ est :

$$dP_e = d\Omega \iiint \alpha(\vec{r}, \vec{u}, l, \omega) \frac{\omega^2}{8\pi^3 c^2} \frac{\hbar\omega}{\exp \frac{\hbar\omega - \mu(\vec{r}, t)}{k_B T(\vec{r}, t)} - 1} d^3\vec{r} \quad (1.18)$$

Il est important de remarquer tout d'abord que la puissance émise est directement reliée au taux d'absorption locale en tout point du système. C'est l'extension

du modèle Kirchhoff au niveau local et à des situations hors équilibre mais en équilibre thermodynamique local. Ensuite, il est important de souligner que sous réserve des hypothèses de thermalisation énoncées plus tôt, cette formule permet de décrire l'émission de lumière d'une grande variété de systèmes si l'on connaît l'absorptivité, la température et le potentiel chimique de radiation en tout point du système.

B.3. Validité de l'hypothèse de thermalisation

Il est possible de vérifier a posteriori si un système est thermalisé ou non, en mesurant un spectre d'émission de ce système.

En supposant que la température T et le potentiel chimique de radiation μ sont uniformes sur le système, en considérant que le pompage du système est faible ($\mu \ll \hbar\omega$), et en se plaçant dans l'approximation de Wien, c'est à dire en ne considérant que les hautes énergies telles que $\frac{\hbar\omega - \mu}{k_B T} \gg 1$, alors la puissance émise par le système peut s'écrire sous la forme :

$$P_e = \iiint \alpha(\vec{r}', \vec{u}, l, \omega) d^3 r' d\Omega \frac{\hbar\omega^3}{8\pi^3 c^2} \exp -\frac{\hbar\omega}{k_B T(t)} \exp \frac{\mu(t)}{k_B T(t)} \quad (1.19)$$

On prend ensuite le logarithme de cette expression :

$$\log(P_e) = \log(\iiint \alpha(\vec{r}', \vec{u}, l, \omega) d^3 r' d\Omega) + 3 \log(\omega) + \log(C) - \frac{\hbar\omega}{k_B T(t)} + \frac{\mu(t)}{k_B T(t)} \quad (1.20)$$

avec $C = \frac{\hbar}{8\pi^3 c^2}$

En supposant que le taux d'absorptivité local varie peu avec la fréquence sur l'intervalle considéré, et comme les variations de $\log(\omega)$ sont négligeables devant les variations de ω à hautes fréquences, on peut considérer que les termes $\log(\iiint \alpha(\vec{r}', \vec{u}, l, \omega) d^3 r' d\Omega)$ et $3 \log(\omega)$ sont constants sur l'intervalle de fréquence considéré. Ainsi, l'expression du logarithme de la puissance émise par le système en fonction du temps t et de la fréquence ω peut se mettre sous la forme

$$\log(P_e(\omega, t)) = B(t) + A(t)\omega \quad (1.21)$$

avec $B(t) = \log(\iiint \alpha(\vec{r}', \vec{u}, l, \omega) d^3 r' d\Omega) + 3 \log(\omega) + \log(C) + \frac{\mu(t)}{k_B T(t)}$ et $A(t) = -\frac{\hbar}{k_B T(t)}$

Par conséquent, si le système est thermalisé, alors pour les hautes fréquences, le logarithme du spectre d'émission du système est une fonction affine décroissante

avec la fréquence, dont la pente $B(t)$ dépend de la température du système, et dont l'ordonnée à l'origine $A(t)$ dépend du potentiel chimique de radiation du système.

L'équipe de Hillhouse a vérifié l'hypothèse de thermalisation d'un morceau de semi-conducteur (GaAs) pompé par une diode laser à 785 nm en s'intéressant au logarithme du spectre d'émission aux hautes énergies (Fig 1.10). En effet, en ne considérant que les points de mesures où le signal est suffisant, et pour $E > 1.18$ eV, le logarithme du spectre d'émission suit une droite décroissante, dont la pente permet de retrouver la température du système $T = 368$ K, et dont l'ordonnée à l'origine permet de retrouver le potentiel chimique de radiation $\mu = 0.58$ eV.

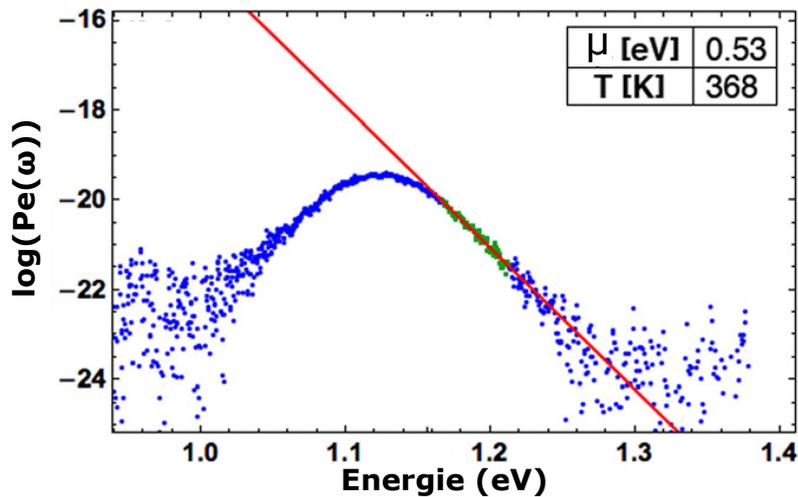


FIGURE 1.9 – Vérification de l'hypothèse de thermalisation du système d'étude de l'équipe de Hillhouse [KATAHARA et al. 2014]. L'ensemble des points (bleus et verts) correspond au logarithme de la mesure expérimentale du spectre d'émission du système, l'ensemble des points verts correspond au logarithme de la mesure expérimentale du spectre d'émission du système dans la zone de validité de l'équation 1.21 et suit une fonction affine décroissante avec l'énergie tracée en rouge. La pente de cette fonction permet d'extraire la température $T = 368$ K du système, et l'ordonnée à l'origine permet d'extraire le potentiel chimique de radiation $\mu = 0.58$ eV.

L'équipe d'Orrit utilise cette technique comme un moyen de déterminer la température électronique dans des nano-cylindres métalliques pompés par un laser Hélium-

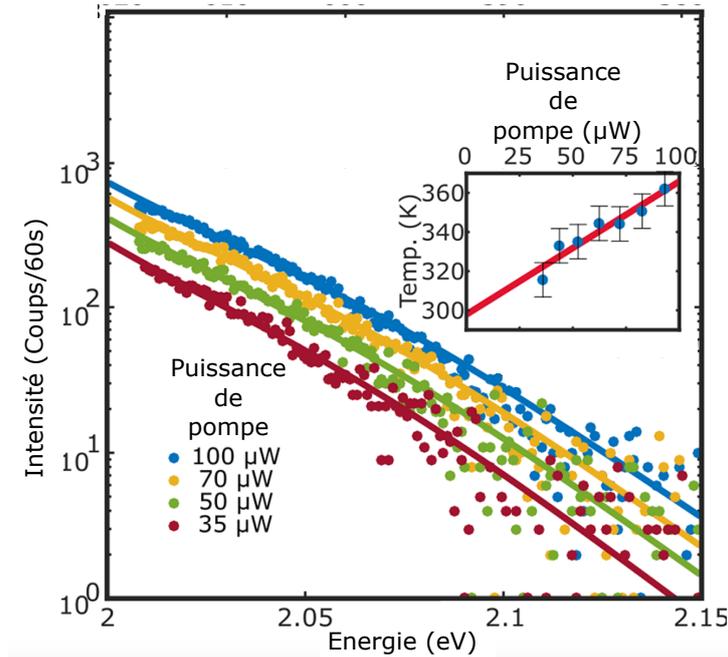


FIGURE 1.10 – Mesure de la température électronique dans des nano-cylindres métalliques pour différentes puissances de pompe, à partir des mesures de photoluminescence [CARATTINO et al. 2018]. Les mesures expérimentales (points) et les simulations (traits pleins) sont tracés dans un repère logarithmique pour des puissances de pompe de $35\mu\text{W}$ (rouge), $50\mu\text{W}$ (vert), $70\mu\text{W}$ (jaune) et $100\mu\text{W}$ (bleu). Les températures électroniques extraites des pentes des spectres mesurés pour les différentes puissances de pompe sont reportées dans la figure en haut à droite.

Néon continu à 633 nm. Le spectre d'émission du système est tracé dans un repère logarithmique pour différentes puissances de pompe. Le modèle utilisé pour retrouver ces mesures expérimentales ne fait pas l'hypothèse que le terme $\log(\iiint \alpha(\vec{r}, \vec{u}, l, \omega) d^3\vec{r}d\Omega)$ varie faiblement avec la fréquence, c'est pour cela que ces mesures ne suivent pas des droites décroissantes. L'absorptivité dans ces nano-cylindre résulte principalement d'une résonance plasmonique qui a été mesurée, et qui a été prise en compte pour tracer les simulations. En mesurant la pente de ces courbes, la température électronique de ces nano-cylindres a été tracée en fonction de la puissance de pompe. Nous observons que plus la puissance de pompe est grande, plus l'ordonnée à l'origine des spectres d'émission est importante, ce qui est cohérent avec le fait que l'ordonnée à l'origine de ces spectres varie avec le potentiel chimique de radiation du système, et que ce potentiel chimique de radiation est relié à la puissance de pompe. Nous observons aussi que la température du système augmente avec la puissance de pompe,

ce qui traduit l'échauffement du système quand ce dernier est soumis à une forte puissance de pompe.

III. Vers une ingénierie de l'émission de lumière

Nous venons de mettre en place un cadre théorique permettant de comprendre et de modéliser l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs thermalisés couplée à un résonateur. Nous allons maintenant montrer que l'on peut utiliser ce modèle pour d'une part, concevoir des sources de lumières dont les propriétés d'émission tel que le spectre, la directivité d'émission ou encore la polarisation d'émission sont contrôlées, et d'autre part, nous pouvons utiliser notre modèle pour retrouver certains résultats expérimentaux dont les précédents cadres théoriques ne rendaient pas compte.

A. Conception de sources

Nous allons voir ici une méthode générique de conception de sources de lumières aux propriétés d'émission contrôlées, basée sur le modèle présenté.

Le point le plus important est que d'après le modèle de Kirchhoff généralisé, nous pouvons remplacer un problème d'émission de lumière par un problème d'absorption de lumière. En d'autres mots, si l'on souhaite concevoir une source qui émette un rayonnement dont le spectre d'émission ait un pic centré à λ_0 , de largeur $\Delta\lambda$, dans une direction d'émission inclinée d'un angle θ_0 et dans une polarisation p , alors il faut que l'absorption dans les émetteurs de cette source à λ_0 , d'une onde plane arrivant avec un angle θ_0 dans la polarisation p soit maximale.

Pour concevoir une source, il faut un point de départ : des émetteurs et un résonateur. Du point de vue de l'émission, les émetteurs sont utiles par définition, pour générer des photons, et le résonateur est utile pour coupler ces photons avec les modes du vides. Du point de vue de l'absorption, le résonateur permet de confiner un champ électrique incident dans les émetteurs, et les émetteurs ont un rôle d'absorbeur.

Ensuite, il faut calculer l'absorption $\alpha(r, \lambda, \vec{\theta},)$ en tout point du système où il y a des émetteurs. C'est la géométrie et la composition du résonateur qui permet de modifier cette valeur d'absorption dans les émetteurs pour les paramètres d'intérêt.

Nous verrons dans les chapitres 3 et 4 comment ce modèle permet de prédire et de décrire le spectre d'émission, la directivité et la polarisation d'émission de telles

sources.

B. Au-delà de l'émission par un émetteur unique

Nous allons ici réinterpréter des résultats expérimentaux dans ce nouveau cadre théorique et voir dans quelle mesure le modèle d'émission par une assemblée d'émetteurs thermalisée permet de rendre compte de certaines observations expérimentales là où une description basée sur une somme incohérente de systèmes à 2 niveaux échouerait à le faire.

B.1. Décalage spectrale

Le système que nous allons étudier a été conçu par A. Degiron [LE-VAN et al. 2016] de l'IEF pour réaliser de l'électroluminescence par des boîtes quantiques en présence d'une métasurface résonante.

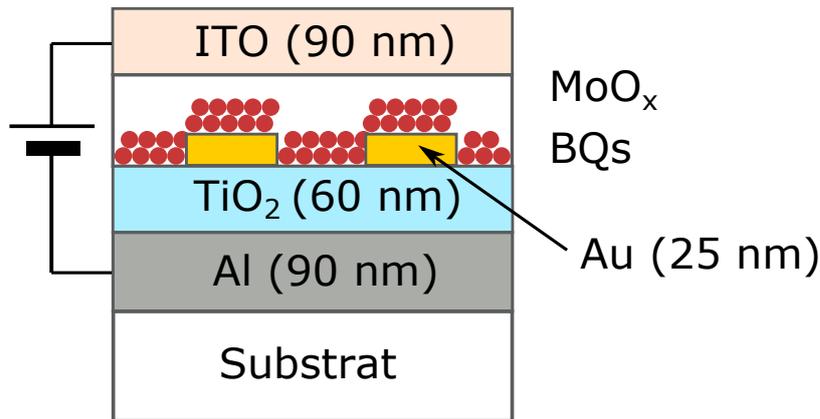


FIGURE 1.11 – Système d'étude de Degiron

Le système (Fig 1.11) est composé d'une assemblée de boîtes quantiques en PbS (Fig 1.12.a) déposée sur un réseau 2D de nano-anneaux d'or. Cet ensemble est compris entre une couche de MoO_x en haut, qui permet le transfert des trous, et une couche de TiO_2 en bas, qui permet le transfert des électrons. Enfin, le tout est compris entre 2 électrodes, une en ITO en haut, qui a la propriété d'être un métal transparent dans le visible, et une électrode d'aluminium en bas. Pour exciter le système, on peut soit appliquer une tension aux bornes des électrodes (électroluminescence), soit pomper optiquement le système en focalisant le rayonnement d'une LED à travers l'électrode transparente d'ITO (photoluminescence). Le spectre d'émission du système est mesuré pour les différentes méthodes d'excitation du système (Fig 1.12.b).

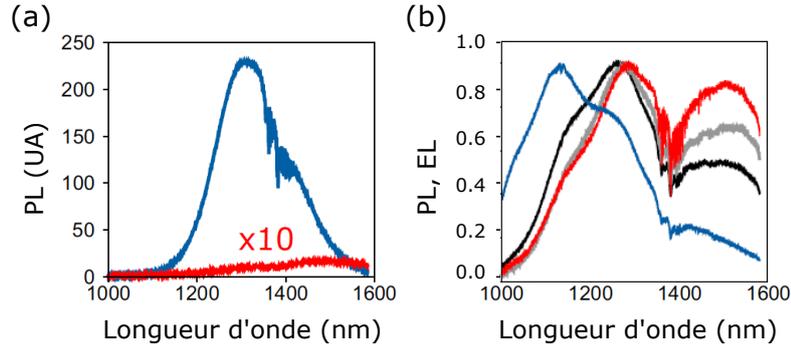


FIGURE 1.12 – (a) Spectres d'émission d'une couche de PbS avec des ligands TOPO (courbe bleue) et des ligands composés de sulfure (courbe rouge). (b) Spectres d'émission du système pompé soit optiquement (courbe rouge), soit électriquement en imposant une tension aux bornes des électrodes de 2.5 V (courbe grise), 3.5 V (courbe noire) et 7 V (courbe bleue). Pour l'ensemble de ces courbes des figures (a) et (b), il y a un artefact de mesure entre 1345 nm et 1480 nm causé par l'absorption de l'atmosphère.[WANG et al. 2018]

Tout d'abord, comparons l'allure générale des spectres d'émission de la structure avec le spectre de photoluminescence d'une simple couche de PbS (Fig 1.12.a). Les boîtes quantiques utilisées dans la structure sont celles avec les ligands de sulfure (courbe rouge). Nous observons une modification spectrale importante entre l'émission de lumière des boîtes quantiques avec ou sans structure. Pour la courbe d'électroluminescence où la tension appliquée entre les électrodes est de 7 V, on observe un maximum d'émission vers 1120 nm, alors que la couche simple de PbS n'émet quasiment pas à cette longueur d'onde.

En considérant qu'il y a thermalisation des boîtes quantiques, alors nous pouvons modéliser l'émission de lumière du système par la formule montrée en 1.19. Dans l'approximation de Wien, chacun des spectres de la figure 1.12.b résulte du produit d'une absorptivité commune aux 4 situations, et d'un facteur $\exp\left(\frac{\mu}{k_B T}\right) \exp\left(\frac{-\hbar\omega}{k_B T}\right)$ avec des valeurs de températures T et de potentiel chimique de radiation μ différentes pour chacune des situations. Comme ces spectres sont normalisés par leur valeur maximale, le terme $\exp\left(\frac{\mu}{k_B T}\right)$ est unitaire. En normalisant chacune de ces courbes par le terme $\exp\left(\frac{-\hbar\omega}{k_B T}\right)$ avec la température adéquate, il est possible de superposer les 4 spectres (Fig 1.13).

Le fait que l'on puisse superposer ces spectres issus de photoluminescence et d'électroluminescence est une signature du fait que nous avons affaire à une assemblée ther-

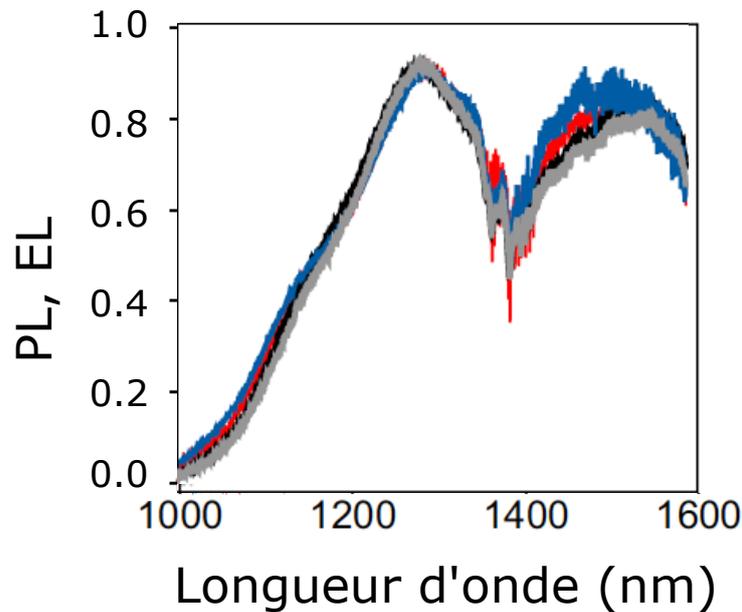


FIGURE 1.13 – Spectres superposés via une normalisation des chacun des spectres de la figure 1.12.b par le terme $\exp\left(\frac{-\hbar\omega}{k_B T}\right)$ pour des valeurs de températures de 300K, de 310K, 328K et 387K pour les courbes rouges, grises noires et bleues

malisée de boîtes quantiques, et valide donc a posteriori la validité de notre modèle pour décrire l'émission de lumière d'un tel système. Par ailleurs, cela nous permet d'expliquer le décalage spectral observé entre l'émission des boîtes quantiques avec ou sans structure résonante. En effet, ce n'est pas l'émission directe des boîtes quantiques qui est filtrée par la cavité, mais bien l'émission de l'ensemble thermalisé. Ce décalage serait explicable sans le modèle de Kirchhoff généralisé à condition de faire deux choses : - prendre en compte le décalage de Stokes. - prendre en compte la modification d'indice de la structure par la pompe.

B.2. Absence de quenching

Il est aussi important de remarquer l'absence de quenching de l'émission de lumière des boîtes quantiques dans le système montré précédemment. Il est connu que la photoluminescence d'émetteurs tel que les boîtes quantiques peut être supprimée quand ces derniers sont très proches d'une surface métallique comme de l'or . L'interprétation standard est de considérer que quand les émetteurs sont suffisamment proches de la surface métallique (moins de 10 nm), un couplage entre les émetteurs et les électrons du métal se crée et donne lieu à un échange d'énergie non radiatif entre les émetteurs et le métal. Plus les émetteurs sont proches du métal, plus ce transfert

non radiatif devient prédominant par rapport à l'émission de lumière. Ce sont donc des processus qui invoquent le couplage de chaque émetteur séparément avec le métal qui décrivent le phénomène de quenching.

Or dans le système précédent, les boîtes quantiques sont en contact avec les nano-anneaux d'or, et il y a pourtant bien de l'émission de lumière. Il s'agit donc de réinterpréter les mécanismes responsables du quenching afin d'expliquer son absence dans ce système. Dans notre modèle, l'émission de lumière du système est directement proportionnelle à la puissance absorbée par les boîtes quantiques, quand ces dernières sont thermalisées. Ainsi, si nous plaçons ces boîtes quantiques sur une structure résonnante comme le réseau de nano-anneaux d'or, le champ dans les boîtes quantiques est exalté, donc l'absorption dans ces boîtes quantiques est augmentée. Par conséquent il y a émission de lumière. Par contre, si l'on dépose ces boîtes quantiques sur une couche uniforme d'or, alors proche de la surface, le champ incident et le champ réfléchi interfèrent destructivement, ce qui aboutit à une inhibition du champ dans les boîtes quantiques, et donc une diminution de l'absorption dans ces boîtes : l'émission de lumière est alors supprimée.

Résumé

Dans ce chapitre, nous avons introduit un nouveau cadre théorique, le modèle de Kirchhoff généralisé, permettant de décrire et de modéliser l'émission de lumière d'une assemblée thermalisée d'émetteurs en cavité. Nous avons montré qu'il était possible de déterminer si un système était thermalisé ou non en s'intéressant au spectre d'émission du système. Enfin, nous avons montré que ce cadre théorique permettait d'expliquer le décalage spectrale de l'émission de lumière d'une assemblée de boîtes quantiques déposées sur un réseau de nano-cylindres métalliques, et nous avons donné une interprétation du phénomène de quenching.

Couplage fort

Nous venons de montrer dans ce premier chapitre que le modèle de Kirchhoff généralisé permettait de décrire l'émission de lumière d'une assemblée thermalisée d'émetteurs, et que l'émission de lumière de cette assemblée était proportionnelle à son absorption. Nous allons donc dans ce chapitre nous intéresser à un ensemble thermalisé d'émetteurs, et allons essayer de contrôler l'absorption de ce système, c'est à dire que nous allons utiliser un résonateur dans le but de confiner le champ électrique à l'intérieur des émetteurs. Ainsi, dans une première partie, nous allons définir le système étudié en choisissant d'une part les émetteurs, et d'autre part le résonateur permettant le contrôle de l'absorption du système. Dans une seconde partie nous exposerons d'abord les techniques de nanofabrication utilisées pour réaliser un tel système, puis nous décrirons le dispositif expérimental utilisé afin de mesurer l'absorption de ce dernier. Enfin, nous commenterons les mesures expérimentales obtenues et nous verrons que les émetteurs et le résonateur sont dans un régime de couplage fort qui permet une modification du spectre et de la directivité de l'absorption du système.

I. Émetteurs et résonateur

Nous souhaitons mettre au point un système simple, composé d'une assemblée d'émetteurs thermalisés dont l'absorption est exaltée par la présence d'un résonateur. Nous avons choisi d'utiliser comme émetteurs des nano-plaquettes (NPs) et comme résonateur un plasmon propagatif. Le choix de ces objets est expliqué par la suite.

A. Émetteurs choisis : les nano-plaquettes

Les NPs sont des nanoparticules synthétisées en solution, composées de Cadmium et de Sélénium, dont les dimensions latérales sont de quelques dizaines de nanomètres, et dont l'épaisseur, de quelques nanomètres, est contrôlée à la couche monoatomique

près [ITHURRIA et al. 2011] (Fig 2.1.a). La description électronique et optique des mécanismes opérants dans une NP est similaire à celle des mécanisme opérant dans un puits quantique. En effet, les électrons dans une telle structure sont libres de se mouvoir dans le plan de la NP, mais sont confinés dans la direction transverse à ce plan [MILLER et al. 1985]. Ainsi l'énergie de l'électron dans une NP est discrétisée dans une des directions. Par ailleurs, du fait de ce confinement, il y a création d'un exciton dans la structure quand cette dernière est pompée, qui se manifeste par un pic étroit dans le spectre d'absorption juste avant l'énergie de gap (Fig 2.1.b).

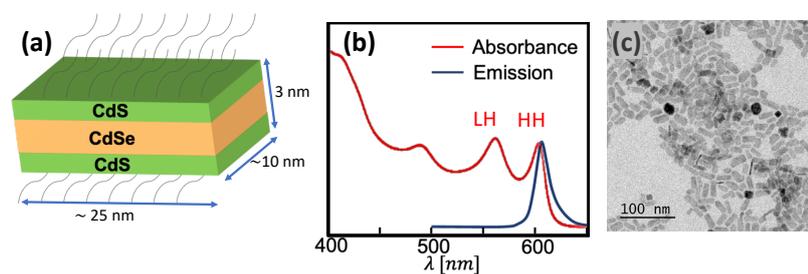


FIGURE 2.1 – (a) Schéma d'une nano-plaquette. (b) Spectre d'absorption et d'émission d'une solution de nano-plaquette. (c) Image TEM de nano-plaquettes

C'est l'épaisseur des NPs qui contrôle l'énergie de la transition excitonique, et par conséquent, c'est cette épaisseur qui régit la longueur d'onde d'absorption et d'émission des NPs.

Ces objets sont synthétisés en solution, et ont été réalisés pour la première fois en 2011 par le groupe de Benoît Dubertret à l'ESPCI. Ces NPs ont une structure cristalline composée de séléniure de cadmium de type zinc-blende. Par un contrôle précis des paramètres de réactions (température et temps de réaction), il est possible de choisir à la couche monoatomique près l'épaisseur de ces NPs. Ainsi, la longueur d'onde d'absorption de chacune des NPs au sein d'une même solution est très proche, ce qui permet de limiter l'élargissement inhomogène. Par conséquent, si l'on utilise une solution de ces NPs comme source de lumière, cette source sera spectralement large d'environ 15 nm. Par ailleurs les NPs ont des moments dipolaires de l'ordre de 60D [FLATTEN et al. 2016], plus important que d'autres nano-émetteurs colloïdaux comme les boîtes quantiques. Ainsi, le couplage de ces objets au champ électromagnétique est plus important, ce qui favorise l'absorption de rayonnement par ces NPs. Enfin, ces NPs sont enrobées d'une coquille afin que d'une part les cœurs soient protégés du phénomène de photo-blanchiment, et donc de rendre les NPs plus robustes vis-à-vis

d'un éclairage proche de la saturation, et d'autre part d'améliorer l'état de surface du cœur, et donc la qualité du confinement des électrons dans le cœur.

Les NPs sont donc de très bonnes candidates pour la réalisation de notre système car :

- La longueur d'onde d'absorption des NPs peut être précisément choisie.
- Du fait de leur grand moment dipolaire, les NPs sont susceptibles d'absorber fortement la lumière à la longueur d'onde d'intérêt.
- Les NPs sont en solution, ce qui permet de réaliser des dépôts sur des structures par simple enduction rotatoire.
- Les petites dimensions de ces objets permettent d'obtenir de grande densité de NPs, et donc de grandes absorptions.

Les NPs que nous avons utilisées nous ont été fournies par Sandrine Ithurria de l'ESPCI et ont les propriétés suivantes :

- Les NPs utilisées sont composées d'un cœur en CdSe de 6 couches monoatomiques et d'une coque en CdS de 2 couches monoatomiques.
- Elles présentent deux pics d'absorption correspondant aux transitions excitoniques des trous lourds (HH) et des trous légers (LH) à 560 nm et 605 nm (HH)(Fig 2.1.b).
- Afin d'éviter que les NPs ne s'agglomèrent dans le solvant (Fig 2.1.c), des ligands (acides oléiques) sont présents autour de la coque. La taille de ces ligands joue sur l'espace minimal entre 2 NPs dans la solution, donc sur la densité de NPs.

B. Résonateur choisi : le plasmon de surface

Nous souhaitons exalter l'absorption dans les NPs via l'utilisation d'un résonateur (cf Chapitre 1). Le résonateur choisi est un plasmon de surface. Considérons 2 milieux semi-infinis, celui du bas est un métal de permittivité diélectrique complexe $\epsilon_m(\omega) = \epsilon'_m(\omega) + i\epsilon''_m(\omega)$, et celui du haut est un diélectrique de permittivité diélectrique réelle (sans absorption) et constant avec la fréquence ϵ_d (Fig 2.2).

Les relations de continuité du champ associées à la résolution des équations de Maxwell dans chacun des milieux permettent de mettre en évidence l'existence d'un

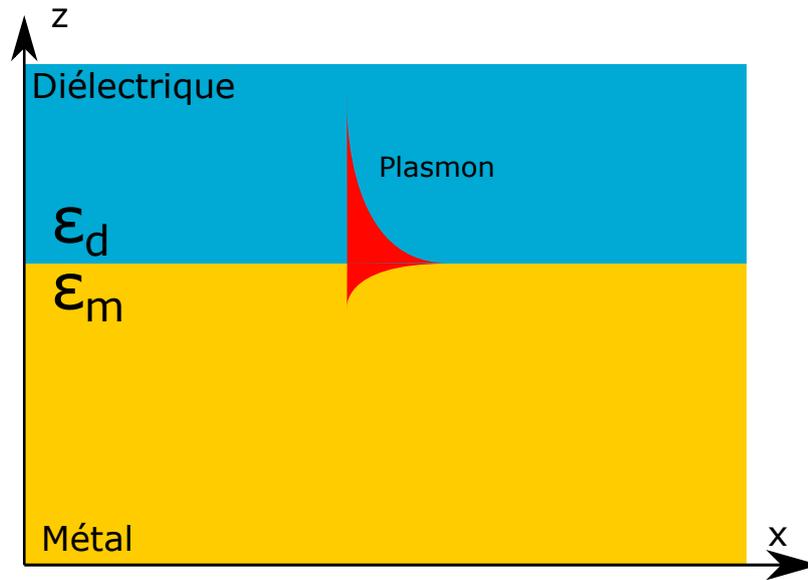


FIGURE 2.2 – Représentation de la composante du champ électrique E_z du plasmon propagatif à l'interface métal-diélectrique.

mode confiné à l'interface entre les 2 milieux appelé plasmon de surface. La relation de dispersion d'un tel mode est la suivante :

$$k_{plasmon} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m(\omega)}{\epsilon_d + \epsilon_m(\omega)}} \quad (2.1)$$

Le plasmon de surface est un mode du champ électromagnétique. Comme nous le verrons plus loin, il est possible de l'exciter et d'observer une réponse résonante qui conduit à une exaltation du champ.

Une façon d'exciter ce mode plasmonique est de coupler un champ excitateur avec ce mode. Pour ce faire, il faut qu'il y ait égalité des vecteurs d'ondes de ce champ excitateur et du plasmon. Comme nous pouvons le voir dans la relation de dispersion du plasmon (Fig 2.3), l'ensemble des couples $(k_{//}, \omega)$ de la relation de dispersion du plasmon est en dehors du cône de lumière $k = \frac{n_d \omega}{c}$. Par conséquent, quelle que soit la fréquence ω considérée, l'inégalité suivante est toujours vérifiée :

$$k_{plasmon} \geq k_{diélectrique} = \frac{n_d \omega}{c} > k_{vide} = \frac{\omega}{c} \quad (2.2)$$

Il est donc impossible d'exciter ce plasmon avec une onde plane car les relations de continuité du champ électromagnétique à l'interface imposent l'égalité du vecteur d'onde parallèle.

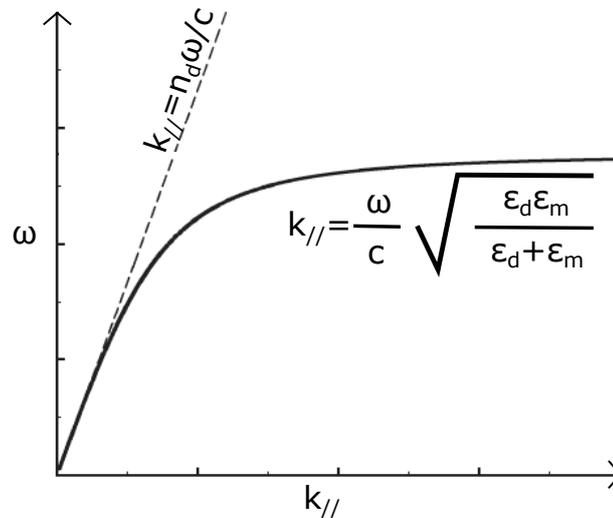


FIGURE 2.3 – Relation de dispersion d'un plasmon propagatif à une interface métal-diélectrique (trait plein) et relation de dispersion de la propagation de la lumière dans le diélectrique (traits pointillés) en fonction de la fréquence ω et du vecteur d'onde k

Une technique utilisée pour l'excitation d'un tel plasmon est la configuration dite de Kretschmann [KRETSCHMANN et al. 1968]. Dans cette configuration, le milieu semi-infini de métal est remplacé par une fine couche de métal (environ 50 nm) déposée sur un diélectrique (verre) d'indice plus élevé que le diélectrique de la couche supérieure (air). Si l'on envoie une onde plane dans le verre, inclinée d'un angle θ par rapport à la normale, alors cette onde plane peut exciter une onde évanescente à l'interface Or/Verre, dont la composante parallèle du vecteur d'onde est la même que celle de l'onde incidente, c'est-à-dire $k_{//} = \sin \theta \frac{n_v \omega}{c}$. En choisissant $n_v > n_d$, il existe des angles θ tel que cette onde évanescente puisse exciter le plasmon, c'est à dire tel que :

$$k^{\text{évanescent}} = k^{\text{plasmon}} > k^{\text{diélectrique}} \quad (2.3)$$

L'égalité des vecteurs d'ondes est donc vérifiée. Si la couche de métal est suffisamment fine, alors une partie de l'onde évanescente peut atteindre l'interface métal-diélectrique et donc exciter le plasmon (Fig 2.4).

Quand il y a excitation du plasmon, le champ électrique est exalté proche l'inter-

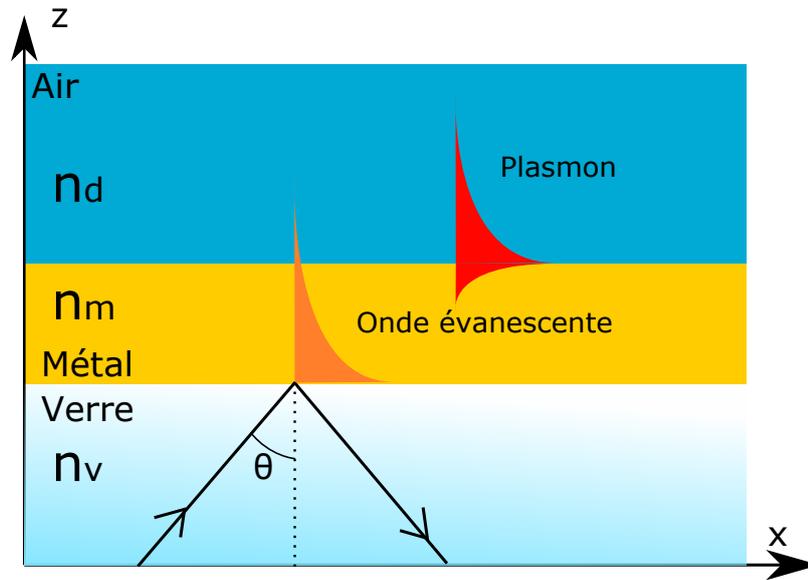


FIGURE 2.4 – Schéma de principe de la configuration dite de Kretschmann.

face or/air. Par conséquent, la puissance absorbée par le métal proche de l'interface or/air est augmentée pour l'ensemble des couples (k, ω) vérifiant la relation 2.1. C'est ce que l'on observe dans le calcul de l'absorption dans de l'or quand il y a excitation du plasmon à une interface or/air (Fig 2.5).

Ainsi, si l'on place une couche de NPs à la place de la couche supérieure de diélectrique (l'air) de la configuration Kretschmann, alors le champ dans cette couche de NPs sera exalté. Or contrairement au cas d'étude décrit précédemment, la partie imaginaire de la permittivité diélectrique des NPs est non nulle à la fréquence d'émission des NPs. Ainsi, si le champ est exalté dans les NPs, alors la puissance absorbée par ces NPs est augmentée.

En résumé, le plasmon de surface joue le rôle d'un résonateur qui augmente le couplage entre un champ incident et les NPs.

II. Étude expérimentale

Nous allons tout d'abord montrer la réalisation de l'échantillon en salle blanche, puis le dispositif expérimental permettant de mesurer la réflectivité de cet échantillon. Enfin nous commenterons et discuterons des résultats expérimentaux obtenus.

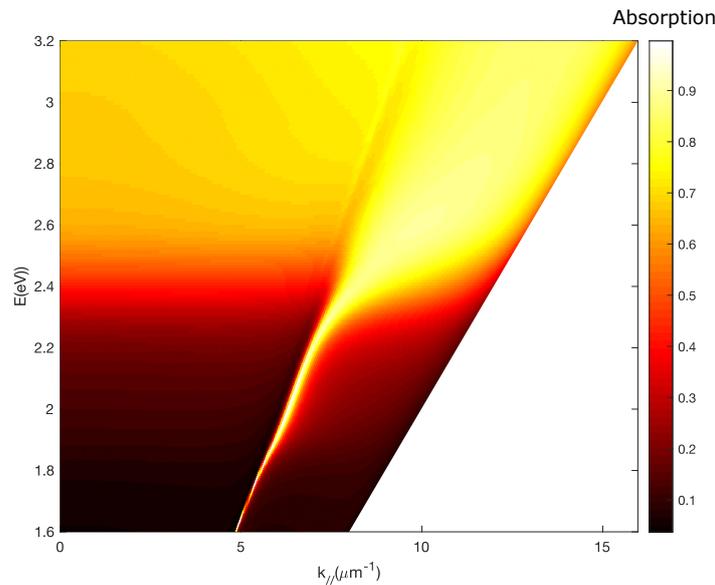


FIGURE 2.5 – Calcul de l'absorption du champ électrique dans de l'or proche de l'interface or/air dans le repère $(E, k_{//})$ avec E l'énergie du rayonnement incident tel que $E = \hbar\omega$ et $k_{//}$ la composante parallèle du vecteur d'onde de l'onde incidente.

A. Nano-fabrication

Nous rappelons que nous souhaitons utiliser le plasmon de surface à l'interface diélectrique/métal afin d'exalter l'absorption dans les nanoplaquettes. Pour ce faire, l'échantillon que nous réalisons a la structure suivante :

- Une lamelle de microscope de chez Schott, d'1 mm d'épaisseur et de 26x22 mm de longueur et de largeur, est utilisée comme substrat de verre (SiO_2).
- Une couche de 3 nm de titane est déposée sur le substrat en verre afin de permettre l'accroche de l'or sur le verre.
- Une couche de 50 ± 3 nm d'or est déposée sur le titane.
- Une couche de NPs est enfin déposée sur l'or.

L'épaisseur de la couche de NPs sur l'or est un paramètre qui doit être contrôlé. En effet, si la couche est trop fine, alors l'absorption de l'échantillon sera trop faible, si la couche est trop épaisse, alors les NPs les plus éloignées de l'interface or/verre ne seront plus en présence du plasmon, et donc ne bénéficieront pas de l'exaltation de champ induite par le résonateur. Afin de contrôler l'épaisseur de cette couche de NPs,

nous réalisons le dépôt de cette dernière par une méthode d'enduction centrifuge.

Les lames verre/or sont tout d'abord nettoyées au plasma à oxygène pendant 10 minutes. Un volume de $120 \mu\text{L}$ de solution de NPs dans du toluène dont la concentration est de 5 mg/mL est déposée sur la face d'or d'une lame. Cette lame est ensuite fixée sur la tournette. Une fois que le volume de solution déposé a recouvert toute la lame, nous mettons en route la tournette. L'échantillon tourne pendant 30 s à une vitesse de 500 tours/minutes, avec des phases d'accélération et de décélération de 5s. Le dépôt réalisé est montré dans la figure 2.6 en photo et au MEB.

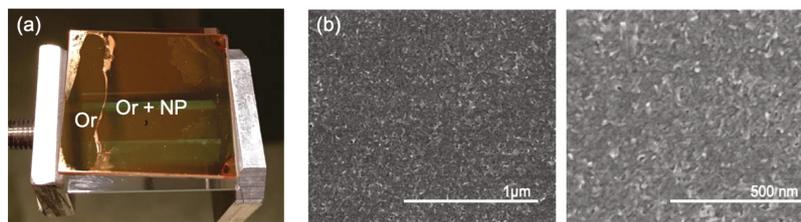


FIGURE 2.6 – (a) Photographie de l'échantillon. Nous pouvons observer la couche homogène de NPs à droite, et la zone sans NPs à gauche. (b) Images MEB du dépôt

L'épaisseur de la couche de NPs est mesurée au microscope à force atomique (AFM) et au profilomètre. Pour ce faire, une petite goutte de résine avait été déposée dans un coin de la lame d'or avant le dépôt de la solution de NPs. Ainsi, il est possible de comparer l'épaisseur de la zone avec NPs avec la zone sans NPs. La mesure à l'AFM nous indique une épaisseur moyenne de 70 nm (Fig 2.7), mais cette épaisseur est celle de la couche de NPs à moins de $15 \mu\text{m}$ de la zone sans NPs et est sans doute supérieure à l'épaisseur de la couche au centre de l'échantillon car il y a eu une accumulation de NPs aux bords de la goutte déposée lors de l'enduction.

La mesure de l'épaisseur réalisée au profilomètre permet de s'affranchir de ce problème car la course de mesure du profilomètre est plus importante et permet de mesurer l'épaisseur de la couche de NPs à une distance du bord de plus de $200 \mu\text{m}$ de la zone sans NPs. L'épaisseur mesurée avec le profilomètre est de $44 \pm 10 \text{ nm}$. Ainsi, comme la longueur de pénétration du plasmon dans la couche de NPs est de l'ordre de la centaine de nanomètres ($\approx \frac{\lambda}{2n_{NPs}}$), nous savons que l'ensemble des NPs de la couche pourra se coupler avec le mode plasmonique. Le calcul de l'indice effectif de la couche de NPs n_{NPs} sera montré plus loin.

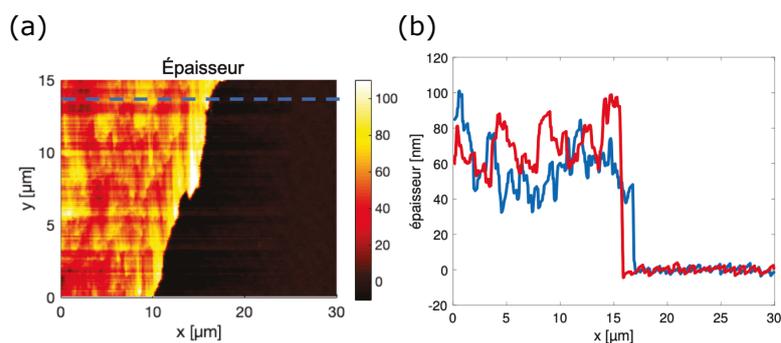


FIGURE 2.7 – (a) Carte de l'épaisseur de la couche mesurée à l'AFM en nm. (b) La courbe bleue représente la coupe selon les pointillés bleus de la figure a, et la courbe rouge représente une autre coupe non représentée ici. L'épaisseur moyenne de la couche est de 70 nm

A.1. Montage expérimental

Nous avons effectué les mesures en collaboration avec Julien Moreau sur un montage expérimental de l'équipe de biophotonique du laboratoire Charles Fabry. Ce montage (Fig 2.8) permet de mesurer la réflectivité de notre échantillon pour différentes longueurs d'ondes et différents angles d'incidence. Le substrat en verre de l'échantillon est fixé à la face supérieure d'un prisme grâce à un liquide dont l'indice optique est le même que celui du prisme et du substrat. Une lumière blanche, spectralement filtrée par un monochromateur de 10 nm de largeur spectrale et collimatée par un miroir parabolique, est envoyée sur le substrat de l'échantillon en traversant une face du prisme, et est partiellement réfléchiée par réflexion totale interne sur l'interface verre/or de l'échantillon pour émerger par l'autre face du prisme. Enfin, ce flux est collecté par une caméra afin d'imager l'interface verre/or de l'échantillon. Le collimateur et la caméra sont disposés sur des bras mécaniques permettant de contrôler avec un pas de $0,1^\circ$ l'angle d'incidence et de collection de la lumière provenant de la source par rapport à la normale à l'échantillon. Enfin, le polariseur permet d'envoyer le faisceau source avec une polarisation TE ou TM.

Il est ainsi possible de mesurer avec ce montage la réflectivité $R(\lambda, \theta)$ en tout point de la zone imagée de l'échantillon par la caméra en contrôlant d'une part la longueur d'onde, et d'autre part l'angle d'incidence du faisceau sur l'échantillon. Nous rappelons qu'il n'y a excitation du plasmon que si le faisceau incident est polarisé TM. Ainsi, afin que la mesure réalisée ne soit pas altérée par les spectres d'émission de la source, et les spectres en transmission du prisme, les mesures en réflectivités pour un couple (λ, θ) en excitation TM sont normalisées par les mêmes mesures en excitation

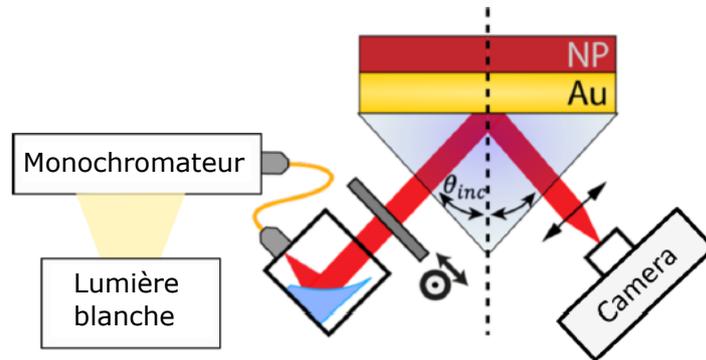


FIGURE 2.8 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour mesurer la réflectivité de l'échantillon

TE. Enfin, pour ne pas être affecté par la granularité de l'échantillon, nous moyennons cette quantité $\frac{I(\lambda, \theta, TM)}{I(\lambda, \theta, TE)}$ sur une zone d'intérêt de l'échantillon d'environ $15 \mu\text{m}^2$.

A.2. Résultats

Nous allons maintenant présenter la mesure expérimentale de la nappe de réflectivité de notre échantillon $R(\lambda, \theta) = \frac{I(\lambda, \theta, TM)}{I(\lambda, \theta, TE)}$ (Fig 2.9). Cette figure représente la mesure de la réflectivité de l'échantillon pour différents angles d'incidences θ et différentes longueurs d'onde λ . Cette mesure de $R(\lambda, \theta)$ est représentée dans le plan $(E, k_{//})$ avec E l'énergie des photons incidents en electronvolts (eV) et tel que $E = \frac{h * c}{\lambda}$ et $k_{//}$ la composante parallèle du vecteur d'onde du faisceau incident en μm^{-1} tel que $k_{//} = n_v \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta$.

Nous observons dans cette mesure 2 branches de minima de réflexion du système ($R \approx 0.2$), indiquées par les croix bleues, qui tendent asymptotiquement vers l'énergie d'émission des NPs ($E_{NP_s} = 2.05 eV$). Ces résultats expérimentaux mettent en évidence un anti-croisement des modes plasmoniques et excitonique : ceci est un indice de la présence d'un régime de couplage fort entre les NPs et le plasmon

A.3. Discussion

Tout d'abord, définissons ce qu'est le régime de couplage fort.

Couplage fort Considérons deux oscillateurs harmoniques pouvant échanger de l'énergie via une interaction qui les relie. Dans notre cas, les 2 oscillateurs considérés

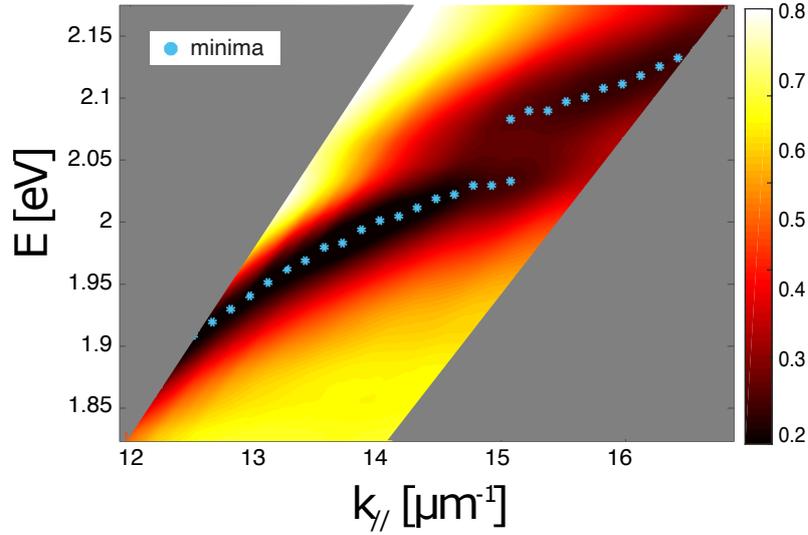


FIGURE 2.9 – Mesure expérimentale de la nappe de réflectivité de notre échantillon.

sont d'une part le plasmon, et d'autre part l'exciton des NPs. Ces deux oscillateurs sont couplés. Le terme de couplage dans le hamiltonien est donné par g . La coopérativité notée $C = \frac{2g^2}{\gamma_{Plasm}\gamma_{NP}}$ avec γ_{Plasm} et γ_{NP} les largeurs spectrales de l'absorption du plasmon et des émetteurs, permet de caractériser le régime de couplage. Dans le régime appelé couplage fort, les nouveaux modes du système sont des combinaisons linéaires du plasmon et de l'exciton. Ceci conduit à une modification de la relation de dispersion et à l'apparition d'un anticroisement dont la largeur est appelée énergie de Rabi. Cette séparation est visible sur la figure 2.9. Ceci indique que l'énergie de Rabi est supérieure aux largeurs spectrales des branches. Ce régime correspond à la condition $g > \gamma_{Plasm}$ et $g > \gamma_{NP}$ ce qui entraîne $C > 1$. On voit également sur la figure 2.9 que la relation de dispersion est aplatie ce qui indique que la dépendance angulaire de l'absorption est notablement modifiée.

En résumé, il apparaît que le couplage fort des NPs avec un plasmon permet de

- modifier le spectre d'absorption.
- modifier la dépendance angulaire de l'absorption.
- comme nous le verrons, augmenter l'absorption.

C'est donc un régime de couplage intéressant pour contrôler l'émission de lumière

par des NPs.

Toutefois, il faut prendre garde au fait que la fig 2.9 ne représente pas la relation de dispersion du système mais la réflectivité qui est la réponse résonante du système. En effet, cette mesure de la réflectivité du système intègre d'une part, la réponse des modes propres du système, c'est-à-dire la contribution résonante des modes du système, et d'autre part, la réponse d'autres modes non résonants du système [SHLESINGER et al. 2019]. Ces deux contributions peuvent interférer, et produire des résonances de Fano [LUK'YANCHUK et al. 2010] qui se manifestent aussi par des creux de réflectivité séparés par un pic.

Par conséquent, la seule mesure de la réflectivité ne permet pas de conclure sur le fait que le système est en régime de couplage fort ou non. Pour s'assurer que le système est bien régime de couplage fort, nous calculons les modes du systèmes. Pour calculer les modes du système, nous avons besoin des permittivité diélectrique de chacune des couches, et notamment celle de la couche de NPs.

Nous modélisons la permittivité de la couche de NPs par une Lorentzienne de la forme

$$\epsilon = \epsilon_b + \frac{f}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma_{pl}\omega} \quad (2.4)$$

avec ϵ_b la composante réelle non résonante de la permittivité de la couche, avec ω_0 la fréquence d'émission des NPs à travers le verre, avec γ_{pl} la largeur du pic d'émission des NPs, et avec f la force d'oscillateur. Ce paramètre permet de caractériser l'intensité du couplage entre la couche de NP et le plasmon de surface.

Les valeurs de ω_0 et de γ_{pl} sont directement extraites du spectre d'émission des NPs (Fig 2.1.b). Les valeurs de ϵ_b et de f sont obtenues en réalisant une simulation de la nappe de réflectivité mesurée $R(\lambda, \theta)$ (Fig2.10). Ces deux paramètres sont ajustés afin que cette simulation soit la plus fidèle possible à la mesure expérimentale.

Les paramètres ajustés obtenus sont : $\epsilon_b = 3.25$ et $f=0.021 \text{ eV}^2$.

Il est maintenant possible de modéliser la permittivité diélectrique de la couche de NPs, et ainsi, nous pouvons calculer les modes du système. Pour ce faire, nous calculons les pôles du facteur de transmission du système en utilisant des codes permettant de résoudre les équations de Maxwell dans des systèmes stratifiés. La partie réelle de ces pôles correspond aux fréquences des modes du système, tandis que la partie ima-

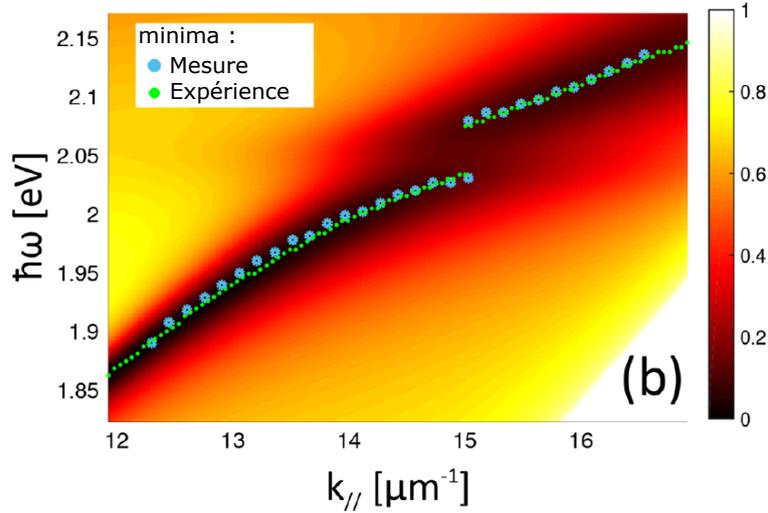


FIGURE 2.10 – Simulation de la nappe de réflectivité mesurée précédemment. Les points bleus correspondent aux minima de réflectivité mesurés, les points verts correspondent aux minima de réflectivité simulé après un ajustement de paramètre de ϵ_b et de f .

ginaire correspond à la largeur de ces modes. Les modes trouvés sont représentés dans la figure 2.11.

Nous observons bien un anticroisement des modes du systèmes, ce qui permet de conclure sur le fait que le système est bien en régime de couplage fort. Nous observons par ailleurs que les zones colorées correspondant aux deux modes se touchent pour $k_{//} = 14,6 \mu\text{m}^{-1}$, ce qui explique pourquoi l'anticroisement mesuré dans la figure 2.9 est faiblement perceptible. Enfin, il est maintenant possible de calculer l'énergie de Rabi séparant les 2 branches. Nous trouvons $\hbar\Omega_R = 46.3 \text{ meV}$. Cette valeur d'énergie de Rabi est supérieure de deux ordres de grandeurs par rapport aux énergies de Rabi mesurées pour des systèmes où une boîte quantique unique est en couplage fort avec un résonateur [OHTA et al. 2011; THON et al. 2009]. Cela est cohérent car plusieurs émetteurs sont en régime de couplage fort dans notre système, ce qui implique que le paramètre de couplage g , et donc l'énergie de Rabi sont plus grands dans notre système.

Contrôle de l'absorption Tout d'abord, comme nous venons de le voir, le couplage de la couche de NP avec le plasmon permet de rentrer en régime de couplage fort, et ainsi de modifier les modes du systèmes. Le contrôle de l'intensité de ce

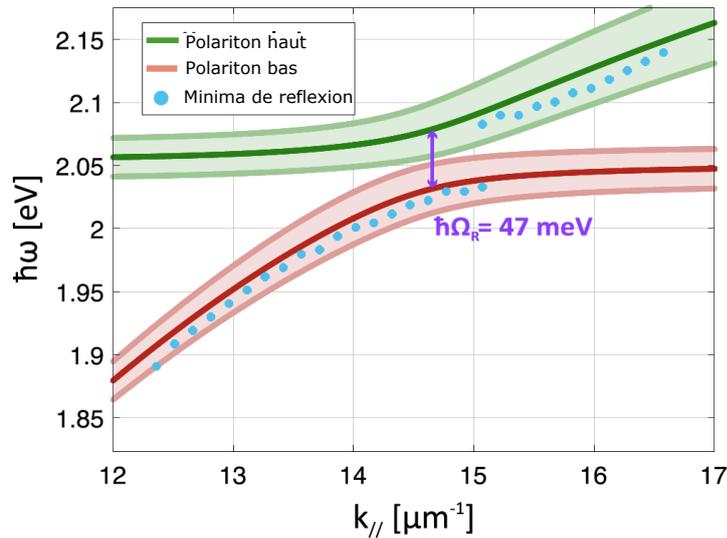


FIGURE 2.11 – Calcul des modes du système. Les traits pleins centraux représentent les fréquences des modes calculés et correspondent à la partie réelle des pôles du facteur de transmission du système, tandis que les largeurs de ces modes correspondent à la partie imaginaire des pôles du facteur de transmission du système. Les minima de réflexions mesurés expérimentalement sont représentés en pointillés.

couplage permet donc de jouer sur la valeur de l'énergie de Rabi, et donc sur la position spectrale et angulaire des modes du système. Ainsi, ce régime de couplage fort est un moyen de contrôler les fréquences et les angles d'absorption du système et donc, d'après le modèle de Kirchhoff généralisé, c'est aussi un moyen de contrôler les fréquences et les angles d'émission du système.

La réflectivité mesurée est celle du système en entier. Ainsi, les minima de réflectivité du système correspondent à des maxima d'absorptivité du système, et il est donc impossible de déterminer la fraction de l'énergie incidente qui est absorbée uniquement par la couche de NPs et pas par la couche d'or. Nous rappelons que dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, l'émission de lumière d'un tel système est proportionnelle à l'absorption dans les couches susceptibles d'émettre de la lumière quand on pompe le système, c'est-à-dire la couche de NPs. La fraction d'énergie absorbée par le métal ne participe pas à l'émission de lumière, et est donc sans intérêt

pour la réalisation de notre source.

Enfin, il est vraisemblable que du fait de l'exaltation de champ par le plasmon dans la couche de NPs, l'absorption dans les NPs de ce système est supérieure à l'absorption d'une simple couche de même épaisseur de NPs. Ainsi l'émission de lumière de ce système devrait être plus intense que celle d'une simple couche de même épaisseur de NPs.

B. Perspectives

Il est possible d'utiliser des NPs dont la largeur du pic d'émission γ_{pl} est plus petite afin que le couplage fort soit amélioré. Il n'a pas été possible de mesurer l'émission de

lumière d'un tel objet car les angles d'émission correspondant aux vecteurs d'ondes ou il y a couplage fort (sont trop grand $\simeq 72^\circ$) pour être collecté par un des objectifs que nous possédons. Nous allons donc étudier un autre échantillon où le couplage des NPs au plasmon est réalisé grâce à un réseau, et où l'on peut contrôler l'angle d'émission du système. C'est l'objet du chapitre suivant. Enfin, le plasmon est polarisé. Par

conséquent, la modification de l'absorption induite par ce dernier dépend de la polarisation, ce qui, dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, permet également de contrôler la polarisation de la lumière émise par le système. Nous exploiterons cette propriété dans le chapitre suivant.

Résumé

Dans ce chapitre, avons mis au point un échantillon composé d'une assemblée de nano-plaquettes sur une lame d'or. Cet échantillon a été conçu dans le but de coupler les NPs avec un plasmon se propageant à l'interface entre l'or et les NPs. Nous avons mesurer la réflectivité de cet échantillon et nous avons conclu en comparant ces résultats à des simulations, que le système est dans un régime de couplage fort.

Ainsi, grâce à l'exaltation de champ induite par le résonateur, nous avons réussi à modifier les fréquences et les angles pour lesquels l'absorption est maximale dans les NPs, en comparaison avec avec l'absorption dans une simple couche de NPs.

Étude de la photoluminescence d'une assemblée de nano-plaquettes couplée à un mode plasmonique

Nous savons maintenant que d'une part, il est possible de modifier les propriétés d'absorption d'une assemblée d'émetteurs en couplant cette assemblée à un mode de résonateur, et que d'autre part, dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, l'émission de lumière d'un système composé d'une assemblée d'émetteurs thermalisés en interaction avec un résonateur, est directement reliée à l'absorption de lumière par le système. Par conséquent, en modifiant les propriétés d'absorption d'un tel système, nous pouvons concevoir des sources de lumière dont les propriétés de direction, de polarisation et de spectre d'émission sont contrôlées.

Nous allons donc dans ce chapitre, concevoir une source de lumière directive et polarisée à partir d'une assemblée d'émetteurs en interaction avec un résonateur. Pour ce faire, nous allons dans une première partie faire de l'ingénierie des modes du résonateur afin de contrôler l'absorption du système, et nous présenterons dans une seconde partie le montage expérimental qui a été mis en place dans le but de mesurer la directivité, la polarisation et le spectre d'émission de la source de lumière.

I. Conception de la source

Nous allons dans cette partie d'une part établir le cahier des charges que doit respecter la source de lumière souhaitée, et d'autre part exposer les solutions techniques retenues pour répondre à ce cahier des charges. Enfin, nous montrerons de quelle manière nous avons choisi la géométrie du résonateur afin de maximiser l'absorption du système.

A. Cahier des charges et solutions retenues

A.1. Cahier des charges

Nous allons exposer ici les conditions générales que doit remplir la source de lumière souhaitée. Tout d'abord, nous souhaitons que la lumière émise par la source soit à minima visible à l'oeil nu. Par conséquent, cette source doit délivrer une puissance suffisante, et son émission doit se situer dans le spectre visible du rayonnement. Ensuite nous souhaitons que la source soit directive, et plus particulièrement qu'elle émette de la lumière dans un cône centré sur la normale à l'échantillon. Enfin, nous souhaitons que l'émission de lumière de la source soit polarisée rectilignement.

A.2. Solutions

Puissance de la source Pour assurer que la source délivre une puissance suffisante, nous souhaitons utiliser des émetteurs dont le rendement quantique, $\eta = \frac{P_e}{P_{abs}}$, avec P_e et P_{Abs} les puissances émises et absorbées par les émetteurs, soit le plus grand possible, c'est-à-dire que pour une énergie donnée fournie aux émetteurs, un maximum de cette énergie soit convertie en rayonnement. De plus, il est souhaitable de bénéficier de l'émission de lumière du plus grand nombre d'émetteurs possibles. Les nano-plaquettes montrées dans le précédent chapitre sont d'excellentes candidates. En effet, il est possible de faire croître des NPs très brillantes dont le rendement quantique η se rapproche de 75% (cf chapitre 2).

Directivité et polarisation L'émission d'une assemblée de NPs aléatoirement répartis est isotrope et non polarisée. Nous devons donc choisir un résonateur qui offre des modes auquel l'assemblée de NPs peut se coupler, et qui permet de maximiser l'absorption de lumière dans les NPs pour des ondes planes incidentes dans une direction donnée et dans une polarisation donnée. Un candidat efficace est le réseau métallique.

En effet, le réseau métallique permet de coupler des ondes planes incidentes dans une direction et une polarisation donnée avec des modes plasmoniques propagatifs à la surface du réseau. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, le plasmon induit une exaltation du champ à la surface du métal. Si l'on dépose les NPs sur la surface du réseau, alors cette exaltation du champ dans les NPs permet de maximiser

l'absorption dans ces NPs.

Pour comprendre comment le réseau métallique permet ce couplage, intéressons nous dans un premier temps à la relation de dispersion d'un plasmon propagatif à une interface métal-diélectrique de permittivité diélectrique respectives ϵ_1 et ϵ_2 . Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, il est possible de coupler un ensemble d'électrons oscillants à la surface du métal avec un champ électrique : c'est l'excitation d'un plasmon propagatif. Pour qu'il y ait effectivement une excitation du plasmon, il faut qu'il y ait égalité entre la composante dans le plan du vecteur d'onde de l'onde incidente avec le vecteur d'onde du plasmon, soit

$$k_{inc//} = n \frac{\omega}{c} \sin \theta = k_{plasmon} \quad (3.1)$$

avec n l'indice du milieu de propagation de l'onde incidente.

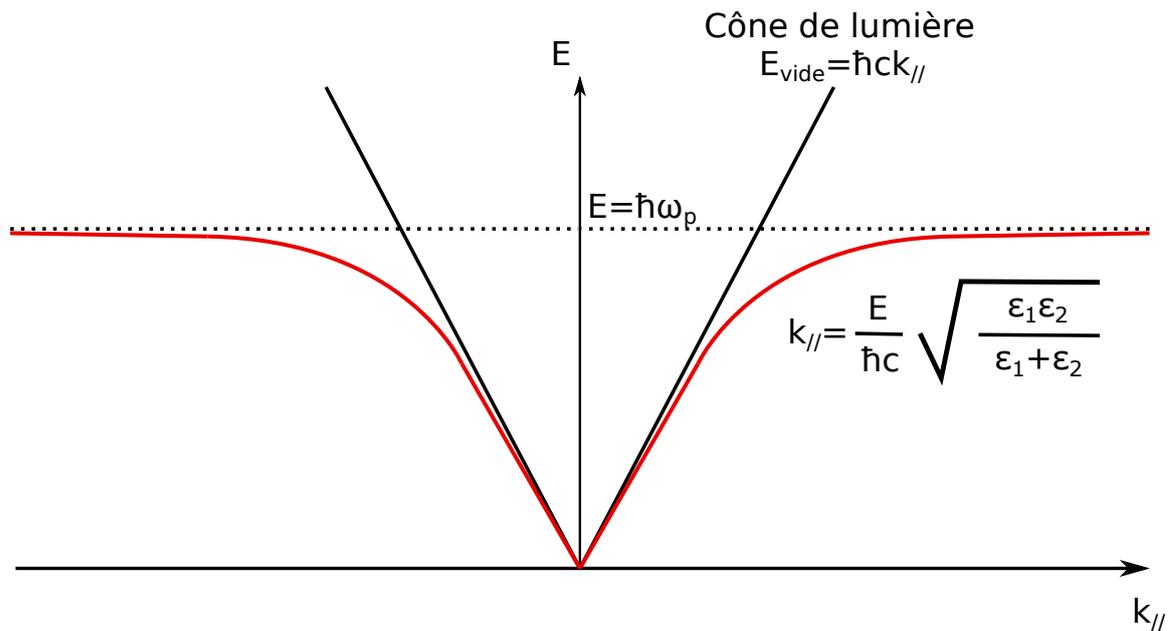


FIGURE 3.1 – Relation de dispersion d'un plasmon se propageant à une interface métal-diélectrique.

Comme nous pouvons le voir sur la représentation de la relation de dispersion d'un plasmon propagatif dans la figure 3.1, la relation de dispersion du plasmon propagatif est toujours en dehors du cône de lumière $E = \hbar c k_{//}$. Cela veut dire qu'il est impossible d'assurer l'égalité 3.1 avec des ondes planes dans le vide, et donc qu'il n'est pas possible d'exciter un plasmon.

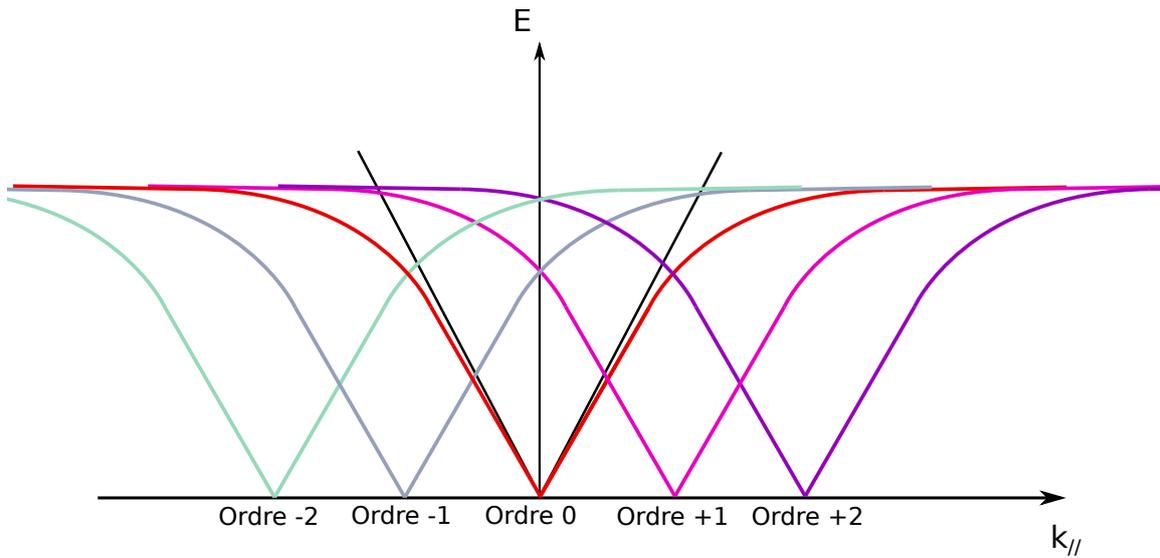


FIGURE 3.2 – Duplication de la relation de dispersion du plasmon par le réseau.

Dans le chapitre 2, nous avons augmenté la valeur de $k_{inc//}$ en propageant les ondes planes incidentes dans un prisme en verre d'indice $n = 1.5$. Ici nous allons assurer l'égalité 3.1 grâce aux propriétés du réseau.

Le réseau crée des ordres diffractés dont les vecteurs d'onde sont donnés par $\vec{k}_{Réseau}^m = m \frac{2\pi}{p} \vec{e}_x$, avec m l'ordre de diffraction considéré, p la période du réseau, et \vec{e}_x le vecteur unitaire dans le plan du réseau et perpendiculaire aux raies du réseau. Cela se traduit par une translation horizontale dans le plan $(E, k_{//})$ de la relation de dispersion du plasmon pour chaque ordre considéré. Ainsi, comme nous pouvons le voir dans la figure 3.2, de nouveaux ordres sont maintenant dans le cône de lumière : on dit que la relation de dispersion a été repliée par le réseau. Il existe ainsi des ondes planes dans le vide susceptibles de pouvoir exciter le plasmon via un des ordres du réseau.

Nous montrerons par la suite qu'en jouant sur les paramètres du réseau, il est possible de modifier sur la relation de dispersion du réseau de telle sorte qu'il y ait excitation du plasmon uniquement pour des ondes planes incidentes arrivant en incidence normale sur le système, à la longueur d'onde des NPs. Ainsi, il n'y a exaltation du champ dans les NPs, et donc exaltation de l'absorption dans les NPs uniquement pour des ondes planes en incidence normale.

Nano-plaquettes et métal du réseau Nous savons que notre source sera composée d'une assemblée de NPs déposée sur un réseau métallique, il nous faut maintenant choisir quelles NPs et quel métal utiliser. Nous choisissons l'or comme métal

constitutif du réseau car, nous avons l'expertise pour réaliser des réseaux en or par lithographie électronique, et car nous avons déjà étudié le comportement plasmonique d'un tel métal (cf Chapitre 2). Enfin, l'or absorbe peu dans le visible (Fig 3.3a). En effet, il faut impérativement choisir un métal qui absorbe le moins possible à la longueur d'onde d'absorption des NPs, car nous souhaitons que la plus grande partie de la lumière émise par les NPs émerge de la structure et ne soit pas absorbée par le métal.

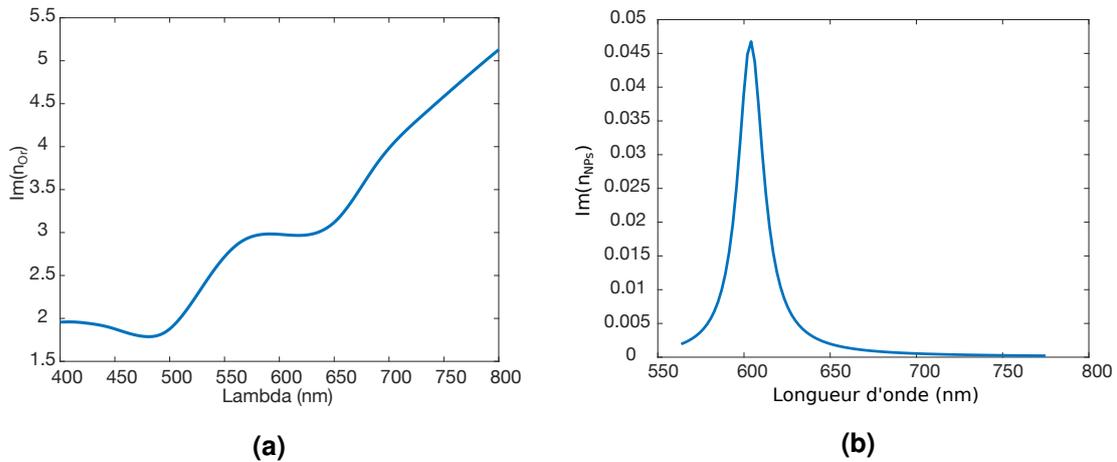


FIGURE 3.3 – Partie imaginaire de l'indice de réfraction de l'or (a) et des NPs choisies (b). L'indice de l'or a été modélisé avec un modèle de Drude-Lorentz [OLMON et al. 2012] et l'indice de la couche de NPs est le même que celui utilisé dans le Chapitre 2.

Nous observons que la courbe représentant la partie imaginaire de l'or entre 400 et 800 nanomètres (Fig 3.3a) est croissante sur cet intervalle. Sachant que l'absorption dans l'or est liée à la partie imaginaire de l'indice de l'or, il est souhaitable de choisir des NPs dont le pic d'émission se trouve dans les petites longueurs d'onde de cet intervalle afin que l'absorption dans l'or soit minimale. Par ailleurs, l'équipe de recherche de Sandrine Ithurria de l'ESPCI capable de synthétiser les NPs [ITHURRIA et al. 2011], arrive à synthétiser des NPs brillantes dont le pic d'absorption peut être choisi entre 600 et 650 nanomètres, en jouant sur le temps de croissance de ces nanocristaux. Ainsi, nous choisissons les mêmes NPs que dans le chapitre précédent, dont le pic d'absorption se situe aux alentours de 605 nanomètres (Fig 3.3b).

En résumé, notre source sera composée d'un réseau en or sur lequel nous allons déposer une assemblée de NPs dont le pic d'absorption se situe aux alentours de 605 nanomètres (Fig 3.4). Nous allons maintenant déterminer la géométrie optimale du

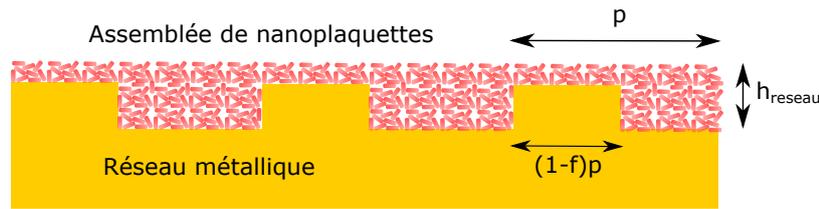


FIGURE 3.4 – Schéma d'un prototype de la source de lumière composée d'une assemblée de NPs déposée sur un réseau d'or.

réseau et l'épaisseur de la couche de NPs à déposer afin de maximiser l'absorption dans la structure.

B. Dimensionnement de la source

Nous avons utilisé une série de codes implémentée sur le logiciel Matlab afin de calculer l'absorption dans la structure quand cette dernière est éclairée par une onde plane dans une direction et une polarisation donnée. Le but de ces simulations est de trouver les paramètres optimaux du réseau, c'est-à-dire sa période p , sa hauteur $h_{Réseau}$ et son facteur de remplissage f , ainsi que l'épaisseur de la couche de NPs h_{NP} à déposer (Fig 3.4) afin de maximiser l'absorption dans les NPs pour des ondes planes arrivant en incidence normales, polarisées TE, et à la longueur d'onde $\lambda = 600\text{nm}$. Nous allons donc dans un premier temps présenter succinctement les codes utilisés pour réaliser les calculs, et nous présenterons dans un second temps les résultats des calculs de l'absorption dans les NPs dans plusieurs différentes configurations afin de comprendre comment l'on doit ajuster la géométrie du réseau afin d'obtenir une source répondant aux critères du cahier des charges.

B.1. Méthode de calcul

Nous utilisons des codes s'appuyant sur la méthode RCWA (Rigorous Coupled Wave Analysis) [MOHARAM et al. 1981] qui permet de calculer, via la décomposition du champ électrique en une somme finie d'harmonique, la répartition du rayonnement absorbée par un système périodique stratifié, quand ce dernier est éclairé par des ondes planes. En renseignant la géométrie du système ainsi que les indices de chacune de ses composantes, il est possible de calculer la puissance absorbée dans une couche du système (Eq 3.2)

$$P_{Abs} = \iiint_{\text{Couche}} \frac{1}{2} \epsilon''(\vec{r}) E^2(\vec{r}) d\vec{r}^3 \quad (3.2)$$

avec ϵ'' la partie imaginaire de la permittivité diélectrique de la couche considérée, et E le champ électrique dans la couche considérée. Cette quantité est calculée pour un ensemble d'ondes planes d'angles d'incidences, de polarisation et de fréquences différentes. Nous pouvons ainsi calculer l'absorption dans la couche

$$Abs^i(\theta, \omega) = \frac{P_{Abs}^i(\theta, \omega)}{P_{Inc}} \quad (3.3)$$

avec θ , i , ω , l'angle d'incidence, la polarisation (TE ou TM), et la pulsation des ondes planes incidentes, et P_{Inc} la puissance transportée par les ondes planes incidentes. C'est la moyenne entre l'absorption pour des ondes incidentes TE et l'absorption pour des ondes incidentes TP qui est ensuite représentée dans le plan $(E, k_{//})$ avec $E = \hbar\omega$ l'énergie exprimée en électron-volts et $k_{//} = \frac{\omega}{c} \sin \theta$ la composante du vecteur d'onde dans le plan du réseau. Nous rappelons que ce sont les NPs qui sont à l'origine de l'émission de lumière dans la structure. Ainsi, dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, c'est l'absorption dans les NPs qui doit être maximisée. La quantité d'intérêt sera celle calculée dans l'équation 4.6 pour la puissance absorbée dans la couche de NPs.

B.2. Résultats des calculs

L'ensemble des absorptions calculées seront présentées dans le plan $(E, k_{//})$ pour des valeurs de E allant de 1 eV à 2.4 eV et pour des valeurs de $k_{//}$ comprises entre 0 et $12 \mu\text{m}^{-1}$, c'est-à-dire pour des ondes planes incidentes de longueurs d'ondes allant de 517 nm à 1240 nm, et dont l'angle d'incidence est compris entre 0° et 89° .

Absorption dans les NPs sans résonateur En premier lieu, regardons l'absorption dans une couche de 30 nm d'épaisseur de NPs déposée sur une couche d'or non structurée (Fig 3.5).

Nous observons dans la figure 3.5 une bande horizontale uniforme centrée sur 2.05 eV, soit l'énergie correspondant à la longueur d'onde d'absorption des NPs. Cette bande correspond à une absorption isotrope de 6% de la couche de NPs. Comme cela a été précisé précédemment, une assemblée aléatoirement répartie de NPs émet de la lumière (donc absorbe de la lumière) de façon isotrope. En d'autres mots, cette source composée d'une assemblée de NPs sur une couche d'or non structurée émet le même rayonnement dans toutes les directions comprises entre 0° et 45° .

En optimisant la géométrie du système, nous cherchons à augmenter significati-

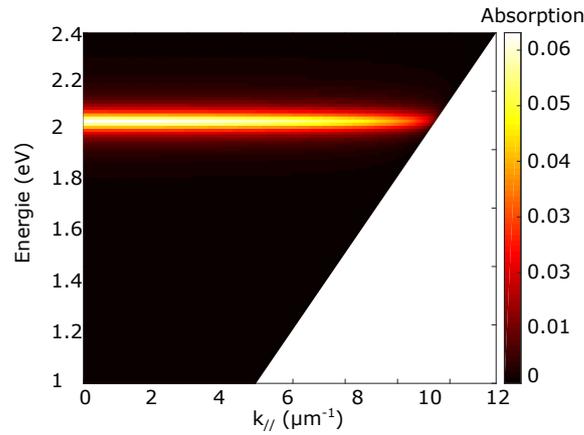


FIGURE 3.5 – Absorption dans une couche de 30 nm d'épaisseur de NPs sur une surface d'or non structurée.

vement la valeur de l'absorption dans la couche de NPs, et à faire en sorte que cette forte absorption prenne place pour des valeurs de $k_{//}$ proche de 0 et soit faible pour les autres valeurs de $k_{//}$.

Absorption dans le réseau d'or Regardons maintenant l'absorption dans trois réseaux d'or de périodes différentes, sans NPs (Fig 3.6).

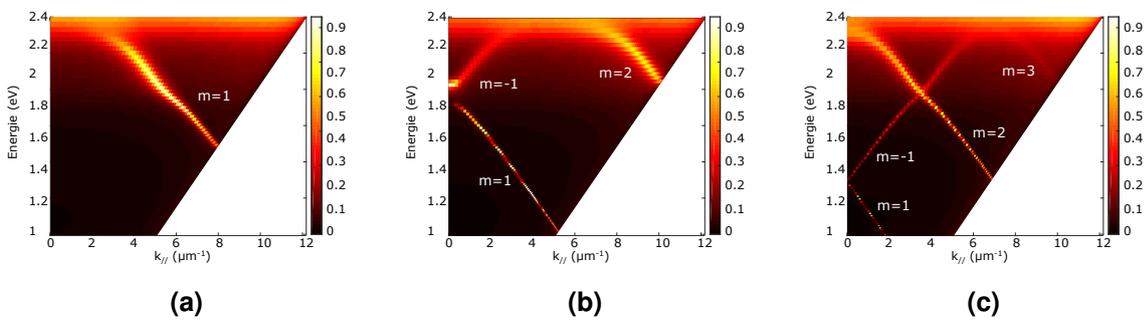


FIGURE 3.6 – Calcul de l'absorption d'un réseau métallique de période $p = 390$ nm (a), $p = 600$ nm (b) et $p = 900$ nm sans nano-plaquettes.

Les motifs formés par l'ensemble des couples $(E, k_{//})$ pour lesquels l'absorption est forte ($> 50\%$) correspondent aux ordres repliés montrés dans le schéma de la figure 3.2.

Nous observons que le nombre d'ordres observables ainsi que la position de ces ordres repliés n'est pas la même selon la période du réseau. Cela est cohérent avec le fait que la translation d'une quantité $\vec{k}_{\text{Réseau}}^m = m \frac{2\pi}{p} \vec{e}_x$ de la relation de dispersion du plasmon pour chacun des ordres dépend de la période du réseau p . En reprenant les

notations de la figure 3.2, seul l'ordre $m = 1$ est observable pour le réseau de période $p = 390$ nm, les ordres $m = 1$, $m = 2$ et $m = -1$ sont observables pour le réseau de période $p = 600$ nm, et les ordres $m = 1$, $m = 2$, $m = 3$ et $m = -1$ sont observables pour le réseau de période $p = 900$ nm.

En conséquence, afin d'exalter le champ dans les NPs pour une onde en incidence normale à la longueur d'onde des NPs, nous devons ajuster la période du réseau de telle sorte qu'un des ordres repliés soit excitable à l'énergie des NPs (2.05 eV) et en incidence normale ($k_{//} = 0$).

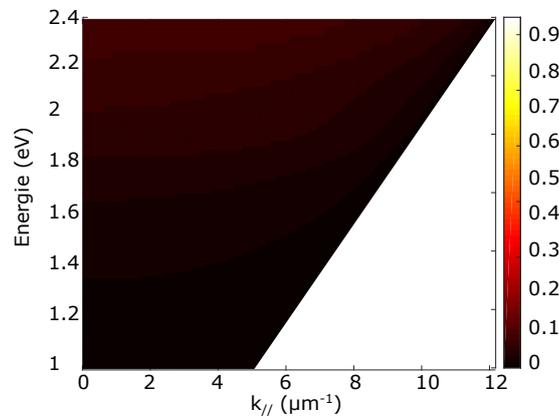


FIGURE 3.7 – Calcul de l'absorption d'un réseau métallique de période $p = 390$ nm éclairé par des ondes planes polarisées TE.

L'absorption dans le réseau de période $p = 390$ nm éclairé par des ondes planes polarisées TE est représentée dans la figure 3.7. Nous n'observons pas les motifs présents dans la figure 3.6a. En effet, de par l'orientation du réseau, seules les ondes planes incidentes ayant une composante du vecteur d'onde selon \vec{e}_x seront affectés par le réseau, c'est-à-dire les ondes planes polarisées rectilignement dans la direction des raies du réseau portée par \vec{e}_y . Par conséquent, les ondes planes polarisées TE, donc polarisées rectilignement dans la direction \vec{e}_x ne seront pas affectées par le réseau, et donc peu absorbées.

Absorption des NPs sur réseau d'or Après avoir exécuté nos codes pour différentes géométries de réseau, nous obtenons un ensemble de paramètres optimum permettant de maximiser l'absorption dans la couche de NPs pour des ondes planes arrivant en incidence normale.

Les paramètres géométriques du réseau et l'épaisseur de la couche de NPs sont les suivants :

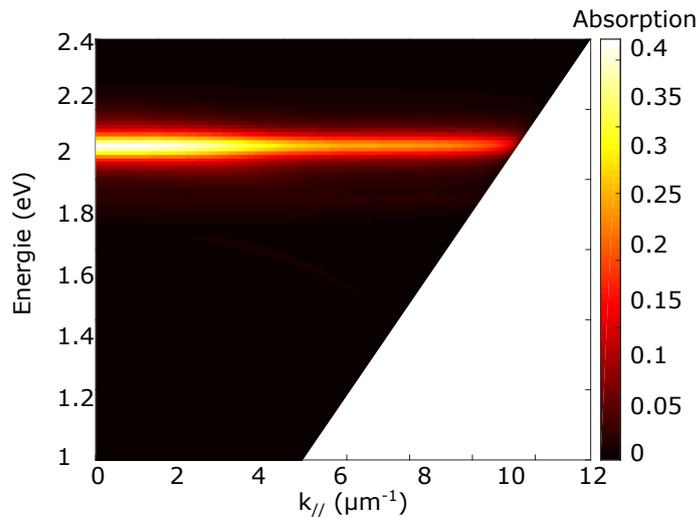


FIGURE 3.8 – Absorption dans une couche de NPs de 29 nm d'épaisseur sur un réseau de période $p=390$ nm

- $h_{\text{Réseau}} = 29$ nm
- $p_{\text{Réseau}} = 390$ nm
- $f = 30\%$
- $h_{\text{Couche}} = 29$ nm

L'absorption calculée dans la couche de NPs sur un réseau avec ces paramètres optimums est présenté dans la figure 3.8. Nous constatons que l'absorption dans la couche de NPs atteint 40% pour des valeurs de $k_{//}$ proche de 0, et diminue quand on s'éloigne de l'incidence normale. Pour mieux quantifier cette variation de l'absorption dans la couche de NPs avec l'angle d'incidence de l'onde plane, nous représentons dans la figure 3.9 l'absorption normalisée calculée avec et sans réseau à l'énergie des NPs pour des angles d'incidence entre -89° et 89° .

Nous observons lobe d'absorption dans la couche de NPs avec réseau pour des ondes planes arrivant sur le système avec une incidence comprise entre -33° et 33° qui n'est pas présent dans la courbe de l'absorption sans le réseau. Il y a donc bien une directivité accrue de l'absorption dans la couche de BQs avec réseau par rapport à l'absorption dans la couche de BQs sans réseau.

Nous pouvons enfin remarquer que la période optimale de réseau trouvée est $p_{\text{Réseau}} = 390$ nm, alors que dans le calcul de l'absorption dans un réseau d'or de période $p_{\text{Réseau}} = 390$ nm sans NPs, présenté dans la figure 3.6a, il n'y a pas d'ordre replié excitable à l'énergie des NPs et en incidence normale. Cela s'explique par le

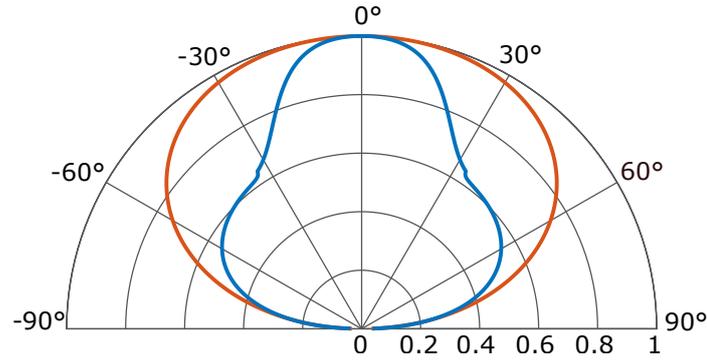


FIGURE 3.9 – Absorption normalisée dans une couche de NPs sans réseau (courbe orange) et avec le réseau d’or (courbe bleue) avec les paramètres optimum trouvés précédemment, à l’énergie des NPs ($E = 2.05$ eV) en fonction de l’angle d’émission dans le plan perpendiculaire aux traits du réseau.

fait que dans le calcul réalisé pour obtenir les paramètres optimaux pour maximiser l’absorption dans les NPs en incidence normale, il y a la couche de NPs dont la partie réelle de l’indice va modifier et déplacer la relation de dispersion du plasmon propagatif à l’interface métal/NPs.

Nous avons donc réussi grâce à l’ajout du réseau d’or, à concevoir un système dont l’absorption dans les NPs est 7 fois supérieure à celle d’une couche de NPs sans réseau, et à lieu en grande partie dans un cône de taille réduite.

Ainsi, si nous construisons cette source, dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, nous pouvons espérer qu’elle émette beaucoup de lumière dans un cône de 66° de rayon angulaire, dans la polarisation rectiligne orientée selon \vec{e}_y (TM).

II. Dispositif expérimental et résultats de mesure

Après avoir dimensionné la source dans le but d’avoir un maximum d’absorption dans les NPs pour des ondes planes arrivant en incidence normale et polarisée selon \vec{e}_y , nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental qui a été mis en place afin de mesurer les propriétés spectrales, de directivité et de polarisation de la source.

A. Dispositif expérimental

Le montage expérimental mis en place est montré dans la figure 3.10.

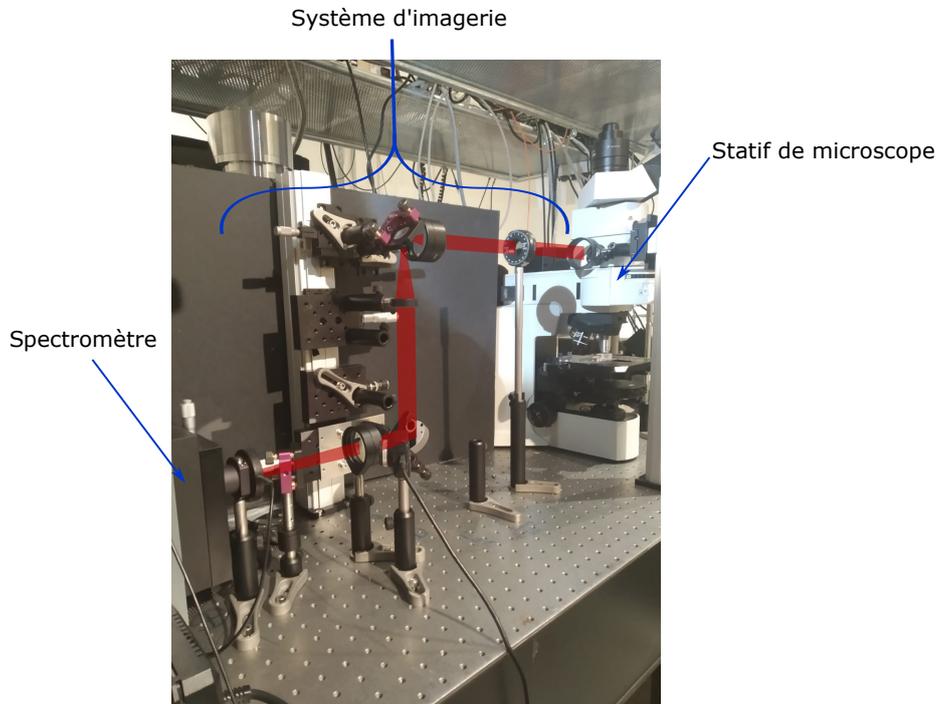


FIGURE 3.10 – Dispositif expérimental utilisé.

La source est placée sur la platine d'observation d'un statif de microscope. Un objectif de microscope est utilisé pour pomper le système, et pour collecter la lumière émise par la source. Cette lumière collectée est ensuite captée par un système d'imagerie permettant d'imager une partie du plan de Fourier de l'objectif sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Enfin, le spectromètre disperse et fait l'image de cette fente sur une caméra CCD. Nous allons maintenant détailler d'une part le rôle de chacune des composantes de ce dispositif expérimental, et d'autre part les compromis réalisés dans le choix des optiques.

Pompage optique de la source Tout d'abord, il est nécessaire d'apporter de l'énergie à la source pour qu'elle émette de la lumière. Comme cela est montré dans la figure 3.3b, les NPs peuvent absorber un rayonnement UV. Nous utilisons le système de pompage optique intégré au statif de microscope en focalisant le flux issu d'une lampe à vapeur de mercure émettant un rayonnement centré en $\lambda_{Pompe} = 432$ nm sur la surface supérieure de la source (Fig 3.11).

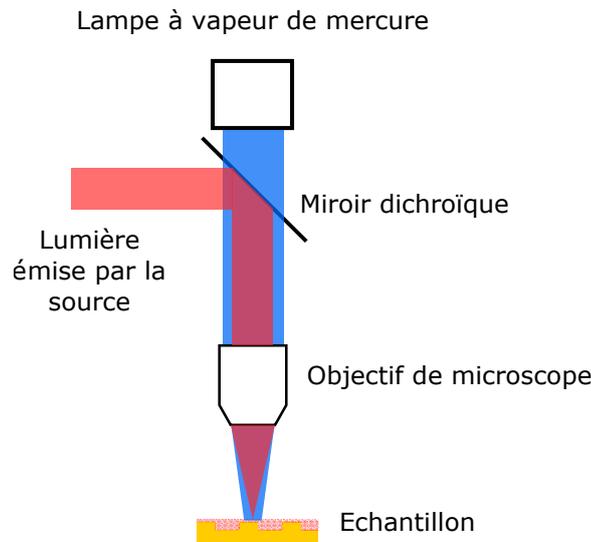


FIGURE 3.11 – Pompage de la source.

Choix de l'objectif C'est le même objectif utilisé pour la focalisation du faisceau de pompe qui est utilisé pour collecter la lumière issue de la source. L'objectif doit pouvoir collecter l'intégralité des rayons dont l'angle d'émergence du réseau est compris entre 0° et 50° afin de pouvoir garder l'information sur la directivité de la source. Nous utilisons ainsi un objectif de microscope de grandissement 100 et dont l'ouverture numérique vaut $O.N = 0.95$. Cet objectif peut collecter la lumière provenant d'une zone de 300 μm de diamètre, ce qui permet de collecter la lumière issue d'un unique réseau de l'échantillon. La grande ouverture numérique de cet objectif permet de collecter des rayons dont l'angle d'émergence de la source par rapport à la normale peut aller jusqu'à 70° .

Filtrage spectral Afin de dissocier le faisceau de pompe du faisceau émis par la source, il est nécessaire de mettre sur le chemin des faisceaux un miroir dichroïque transmettant la lumière de longueur d'onde inférieure à 500 nm et réfléchissant la lumière de longueur d'onde supérieure à 500 nm. Cela permet de ne collecter que la lumière d'intérêt, et cela permet d'utiliser l'oculaire du statif de microscope afin de faire la mise au point sur l'échantillon sans recevoir de rayonnement UV dans les yeux.

Imagerie du plan de Fourier Nous souhaitons pouvoir mesurer dans quelle direction notre source émet de la lumière afin de s'assurer que notre source soit directive. Pour cela, il est pratique de s'intéresser au plan de Fourier de l'objectif de collection.

En effet, le plan de Fourier de l'objectif est un plan dont la position des motifs dans ce plan nous renseigne sur la distribution en angle de l'émission de lumière de la source.

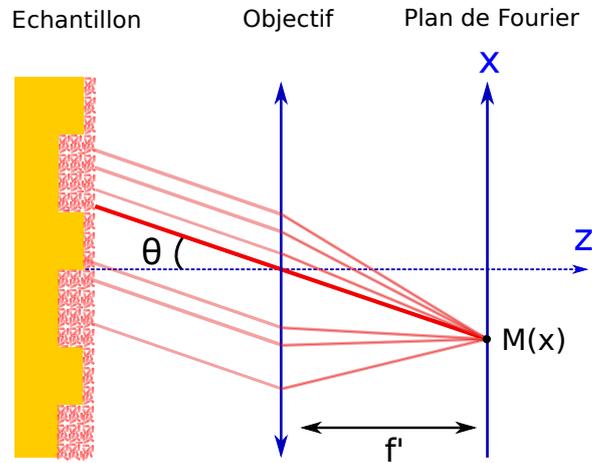


FIGURE 3.12 – Focalisation dans le plan de Fourier d'un faisceau de lumière émergent de la source avec un angle θ par rapport à la normale.

Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.4, la mesure de l'intensité selon l'axe vertical x du plan de Fourier permet de connaître l'intensité émise par le système dans le plan perpendiculaire au réseau, dans la direction inclinée d'un angle θ par rapport à la normale. En effet, l'intensité mesurée au point $M(x)$ est l'intensité de la lumière émise par la source dans la direction inclinée d'un angle θ par rapport à la normale avec $x = f' \sin(\theta)$.

Nous allons donc imager le plan de Fourier de l'objectif sur une caméra CCD afin d'obtenir l'information sur la distribution en angle de l'émission de lumière de la source.

Choix des optiques pour l'imagerie du plan de Fourier Nous utilisons un ensemble de 4 doublets achromatiques et 2 miroirs plans dont les focales et les dimensions sont choisies tout d'abord afin d'ajuster le grandissement pour que l'intégralité du champ du plan de Fourier soit imagé sur la caméra CCD, ensuite afin de s'assurer que le système soit télécentrique, et enfin pour que la totalité du flux émergent du plan de Fourier de l'objectif arrive jusqu'au détecteur.

Le plan de Fourier de l'objectif a un diamètre $D_{PF} = f'_{Obj} * O.N = 3.4$ mm avec $f'_{Obj} = 1.8$ mm, la focale de l'objectif, et le détecteur utilisé est une matrice CCD dont la zone active mesure $L = 30$ mm de longueur pour $H = 3.8$ mm de

hauteur. Afin que l'intégralité du champ du plan de Fourier de l'objectif soit imagé sur l'intégralité du capteur CCD, il faut que le grandissement introduit par les 4 doublets soit $g = \frac{H}{D_{PF}} = 1.1$

Un système optique est dit "télécentrique objet" si sa pupille d'entrée est envoyée à l'infini dans l'espace objet. Une conséquence de cela est qu'un système optique télécentrique objet est un système qui assure que la collection de la lumière issue de chaque point de la source ait la même distribution angulaire. Comme nous nous intéressons à la direction d'émission de lumière de la source, il est important que le système optique d'imagerie n'introduise pas une déformation de la distribution angulaire d'émission.

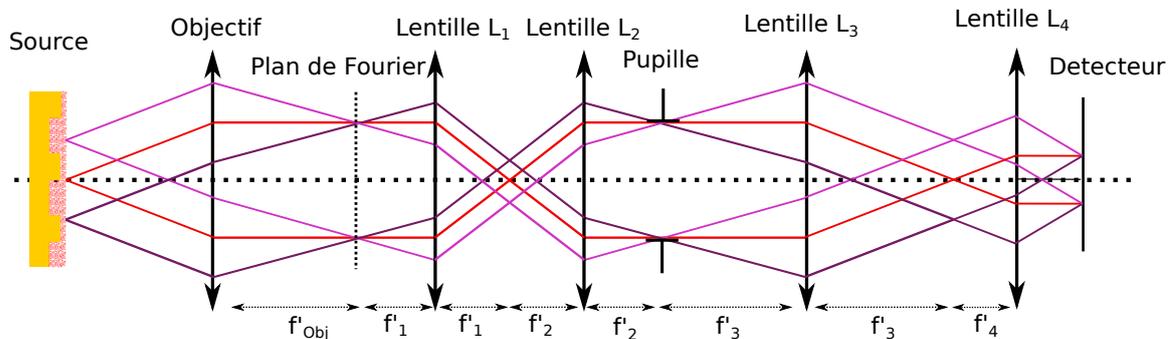


FIGURE 3.13 – Schéma de principe du montage télécentrique objet

Une façon suffisante de s'assurer que le système soit télécentrique objet est que le plan focal image d'une lentille donnée soit confondu avec le plan focal objet de la lentille suivante, et que la pupille du système soit placée sur l'image intermédiaire du plan de Fourier de l'objectif. Comme nous pouvons le voir dans la figure 3.13, l'image de la pupille par les lentilles L_2 , L_1 , et l'objectif est bien envoyée à l'infini dans l'espace objet. Par ailleurs, nous voyons bien que les cônes de lumières provenant de différents points de la source et arrivant jusqu'au détecteur sont les mêmes, et sont à symétrie de révolution autour du rayon principal associé à chaque point. Cette configuration impose que la distance séparant le plan de Fourier de l'objectif et le détecteur soit $D = f'_{Obj} + 2(f'_1 + f'_2 + f'_3 + f'_4)$

Enfin, nous souhaitons avoir des optiques dont le diamètre est suffisamment grand afin de pouvoir capter l'ensemble du flux émergent du plan de Fourier.

Nous avons utilisé le logiciel LightTools permettant de réaliser des tracés de rayons

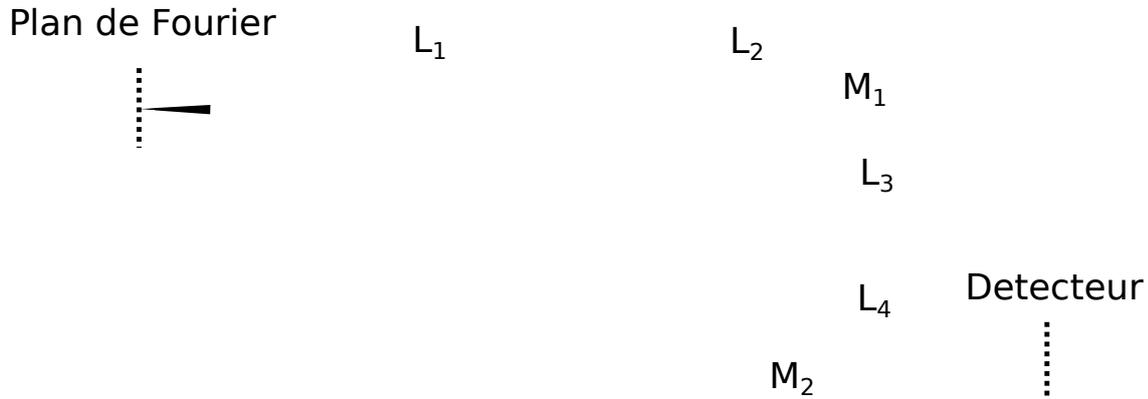


FIGURE 3.14 – Tracé de rayon avec le logiciel LightTools

dans un système optique fictif afin de réaliser un compromis vis à vis des focales et des dimensions des optiques pour respecter les contraintes de grandissement, d'encombrement et de collection de flux exposées précédemment (Fig 3.14). Les optiques choisies sont donc les suivantes :

- Un doublet L1 de focale $f'_1 = 300$ mm et de diamètre $D_1 = 2''$.
- Un doublet L2 de focale $f'_2 = 75$ mm et de diamètre $D_2 = 2''$.
- Un doublet L3 de focale $f'_3 = 50$ mm et de diamètre $D_3 = 30$ mm.
- Un doublet L4 de focale $f'_4 = 200$ mm et de diamètre $D_4 = 2''$
- Un miroir plan M1 de diamètre $D_{M1} = 1''$
- Un miroir plan M1 de diamètre $D_{M2} = 2''$

Mesure du spectre d'émission Afin de pouvoir caractériser spectralement notre source, nous souhaitons mesurer le spectre d'émission de la source pour chaque angle d'émission. Nous introduisons un spectromètre à réseaux entre le système d'imagerie du plan de Fourier et le détecteur. Ainsi, l'axe x du plan de Fourier n'est pas directement imagé sur une caméra CCD, il est imagé sur la fente d'entrée du spectromètre. Comme la fente d'entrée du spectromètre est conjuguée avec la caméra associée au spectromètre avec un grandissement $g_{spectro} = 1$, le dimensionnement des lentilles présenté précédemment reste valable.

Ainsi, ce montage permet de restituer l'information sur l'angle d'émission θ de la source sur l'axe vertical de la caméra du spectromètre, et de restituer l'information sur

les longueurs d'ondes d'émission selon l'axe horizontale de la caméra du spectromètre. Nous sommes donc en capacité de réaliser des mesures angulo-spectrales de l'intensité d'émission $I(\theta, \lambda)$ de notre source de lumière. Par un traitement numérique, il est donc possible à partir de ces mesures, de représenter l'intensité d'émission dans le plan $(E, k_{//})$ avec $E = \frac{h}{c\lambda}$ et $k_{//} = n \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta$, et donc de pouvoir comparer les mesures réalisées avec les simulations de l'absorption présentées précédemment.

Mesure de la polarisation d'émission Afin de mesurer $I(\theta, \lambda)$ dans une polarisation donnée, nous introduisons une lame quart d'onde suivi d'un polariseur entre les lentilles L_1 et L_2 .

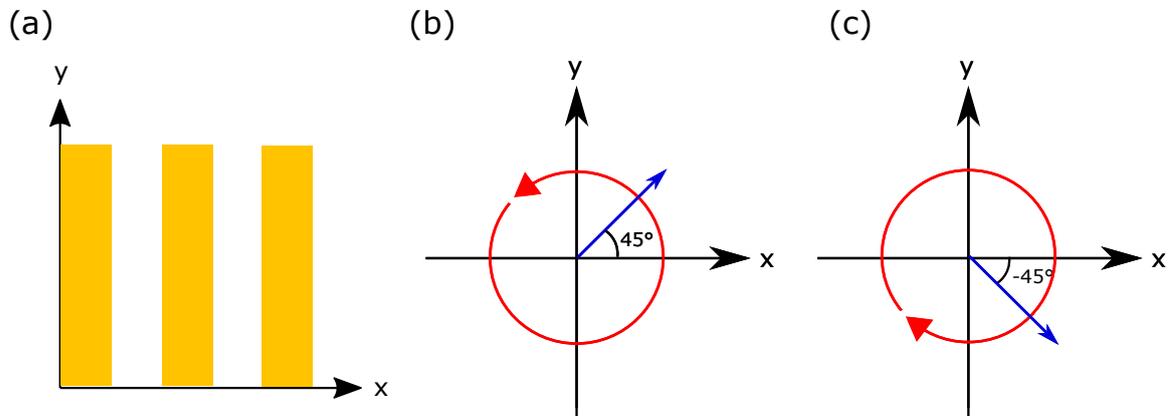


FIGURE 3.15 – Convention d'orientation des axes (a). En rouge, les états de polarisations circulaires gauche (b) et droite (c) de la lumière avant la lame quart d'onde. En bleu, les états de polarisations linéaires à 45° (b) et -45° (c) en sortie de la lame quart d'onde

Nous choisissons la convention d'orientation suivante (Fig 3.15.a) : l'axe horizontale x est perpendiculaire aux traits du réseau, l'axe verticale y est parallèle aux traits du réseau.

L'association d'une lame quart d'onde avec un polariseur permet par une simple rotation du polariseur, de mesurer l'intensité de l'émission de lumière par la source dans la polarisation linéaire horizontale, linéaire verticale, circulaire gauche et circulaire droit.

Il faut d'abord s'assurer que les axes neutres de la lame quart d'onde soient alignés avec les axes x et y défini dans la figure. Ainsi, la lumière émise avec une polarisation horizontale ou verticale ne sera pas affectée par la lame quart d'onde. Il suffit ensuite de tourner le polariseur afin que l'axe de projection de ce dernier soit aligné avec l'axe x pour la mesure de la polarisation linéaire horizontale, ou avec l'axe y pour

la mesure de la polarisation linéaire verticale. La lumière émise par le système avec une polarisation circulaire droite ou gauche sera polariser linéairement $\pm 45^\circ$ après la lame quart d'onde. Il suffit donc d'orienter le polariseur afin que l'axe de projection du polariseur soit orienté à 45° pour la mesure de la polarisation circulaire gauche (Fig 3.15.b), ou à -45° pour la mesure de la polarisation circulaire droite (Fig 3.15.c).

Résumé

Dans ce chapitre, nous avons conçu une source de lumière composée d'une assemblée de NPs déposée sur un réseau d'or. D'après les calculs réalisés, cette source est quasi monochromatique et émet dans le spectre visible du rayonnement ($\lambda \simeq 605$ nm), cette source est directive dans le plan perpendiculaire au traits du réseau avec une émission de lumière majoritairement comprise entre $\theta = -33^\circ$ et $\theta = 33^\circ$, cette source émet de la lumière polarisée TM, c'est-à-dire avec une polarisation linéaire parallèle aux traits du réseau. Ensuite nous avons montré le dispositif expérimental qui a été mis en place afin de mesurer les propriétés énoncées précédemment. Par la suite, nous réaliserons cette source via des techniques de nanofabrication, et mesureront les performances de cette dernière.

Étude de la photoluminescence d'une assemblée de boîtes quantiques couplée à un mode guidé

Pour illustrer la capacité du modèle de Kirchhoff généralisé à décrire l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs thermalisés en cavité, et à prédire des phénomènes jusqu'alors inexpliqués par les modèles précédents, nous proposons de modéliser et simuler l'émission de lumière d'un troisième système d'étude. Dans ce chapitre, nous commencerons par décrire les processus d'émission qui ont lieu dans ce nouveau système d'étude qui consiste en une couche de boîtes quantiques (BQs) surplombée par un réseau en BQs. Dans un second temps, nous analyserons les mesures expérimentales de la luminescence de ce système. En appliquant le modèle de Kirchhoff généralisé à ce système, nous expliquerons l'origine du décalage spectral entre l'absorption des BQs et l'émission du système. Enfin la troisième partie sera consacrée à la compréhension de la directivité et de la polarisation d'émission du système en s'appuyant sur des mesures expérimentales de la luminescence du système dans le plan de Fourier.

I. Système d'étude

Le système d'étude de ce dernier chapitre est un nouveau type de source de lumière qui consiste en un réseau composé de boîtes quantiques, réalisé par E.De Leo de l'équipe de D.J.Norris à l'ETH Zurich. [DE LEO et al. 2017]. Nous allons nous intéresser ici à la géométrie du système, à sa fabrication et aux boîtes quantiques utilisées.

A. Géométrie du réseau

La structure du système est la suivante (Fig 4.1) :

- Tout en haut, il y a le réseau de BQs de hauteur $h_{Réseau} = 50$ nm, de période $p = 410$ nm et dont le facteur de remplissage est de $f = 50\%$.
- En dessous nous avons une couche de BQs de hauteur $h_{Couche} = 110$ nm.
- En dessous nous avons une couche de résine epoxy d'épaisseur $h_{Epoxy} = 1$ mm.
- Et enfin tout en bas nous avons le substrat de verre. SiO_2

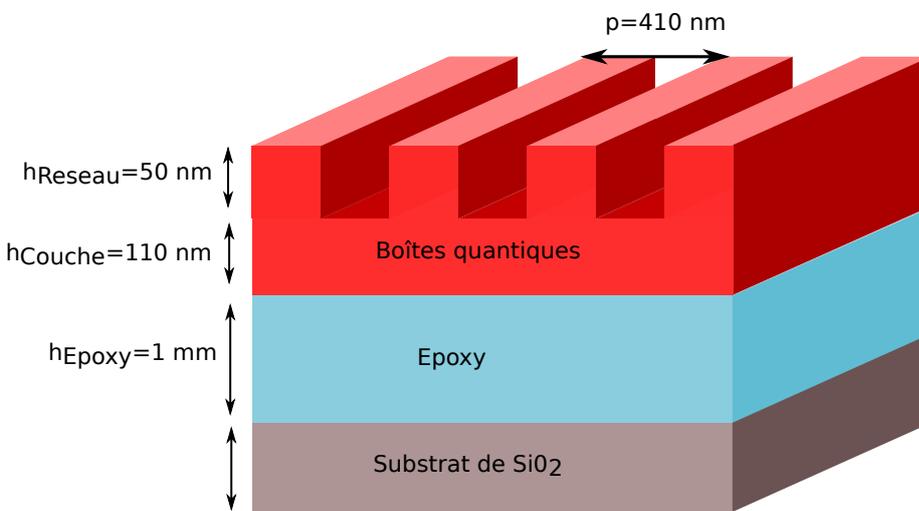


FIGURE 4.1 – Schéma du système d'étude.

B. Boîtes quantiques

Les BQs sont des nano-cristaux de semi-conducteur dont les électrons sont confinés dans les 3 directions de l'espace : les niveaux d'énergies de ces objets sont donc discrétisés, c'est pour cela que les BQs sont appelées "atomes artificiels". Les BQs sont synthétisées en solution, et la longueur d'onde d'émission de ces objets est accordable en jouant sur la taille de ces nano-cristaux [ALIVISATOS 1996]. Les BQs ont un pic d'émission étroit dans le visible et dans le proche infrarouge [MURRAY et al. 1993], et commencent à faire leur apparition dans les nouvelles technologies d'écrans lumineux [COLVIN et al. 1994].

Les BQs utilisées dans le système sont composées d'un cœur en séléniure de cad-

mium (CdSe), et d'une coquille composée de 2 couches monoatomiques de sulfure de cadmium (CdS) et de 2 couches monoatomiques de sulfure de zinc (ZnS). Les BQs utilisées ont un diamètre d'environ 10 nm, ce qui impose un pic d'absorption aux alentours de 615 nm.

C. Nanofabrication

La solution de BQs est déposée dans un moule en silicium ayant la forme du réseau. Après évaporation du solvant, une couche de résine epoxy est déposée sur la couche de BQs, puis un substrat en verre est déposé sur la résine epoxy. La résine epoxy est une colle transparente permettant le maintien des BQs sur le substrat, et n'altérant pas l'émission de lumière des BQs. L'ensemble substrat, résine epoxy, et BQs est retiré du moule de silicium (Fig4.2).

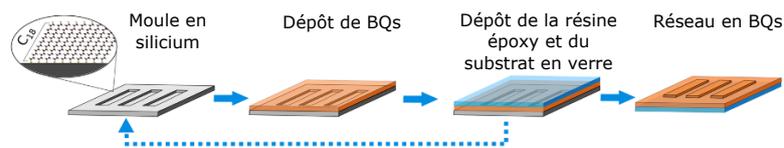


FIGURE 4.2 – Etapes de la réalisation de la couche structurée de BQs [PRINS et al. 2017]

II. Etude expérimentale de l'émission de lumière du système

L'équipe de D.J.Norris a réalisé une mesure expérimentale angulaire et spectrale de l'émission de lumière de ce système. Nous allons dans cette partie présenter les résultats de cette mesure, et essayer de comprendre comment certaines propriétés d'émission du système, notamment son spectre, ont été modifiées par rapport à l'émission de BQs seules. Pour ce faire, nous nous appuyerons sur les résultats de simulations numériques réalisées à partir du modèle de Kirchhoff généralisé.

A. Résultats expérimentaux

Les mesures angulaires et spectrales de l'émission de lumière de ce système $I_0(\lambda, \sin \theta)$ ont été réalisées avec le dispositif expérimental suivant . (Fig 4.3)

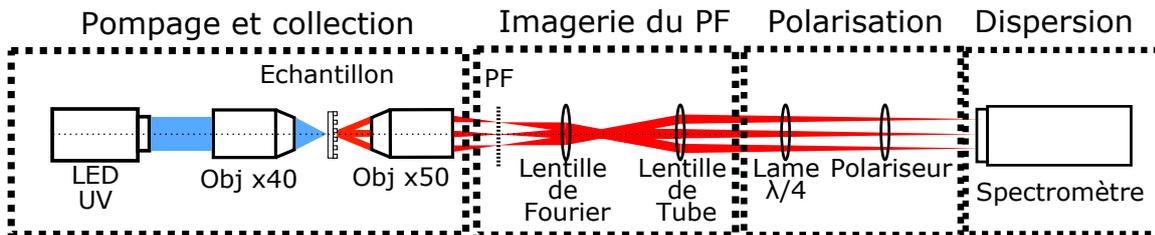


FIGURE 4.3 – Dispositif expérimental de mesure de la relation de dispersion du système d'étude .

Dispositif expérimental Ce dispositif est très similaire à celui que nous avons conçu et assemblé pour les mesures angulaires et spectrales présentées dans le chapitre précédent. Le système est pompé par une LED UV dont le flux est focalisé sur la face inférieure de l'échantillon. Le rayonnement de photoluminescence du système est collecté par un second objectif de grande ouverture numérique ($NA = 0.8$). Le plan de Fourier de cet objectif est ensuite imagé sur la fente verticale d'entrée d'un spectromètre. C'est l'image de la fente qui est dispersée par le réseau du spectromètre, puis collectée par la matrice CCD de la caméra. Enfin, une lame quart d'onde et un polariseur sont placés dans le dispositif afin de mesurer l'émission de lumière dans une polarisation choisie.

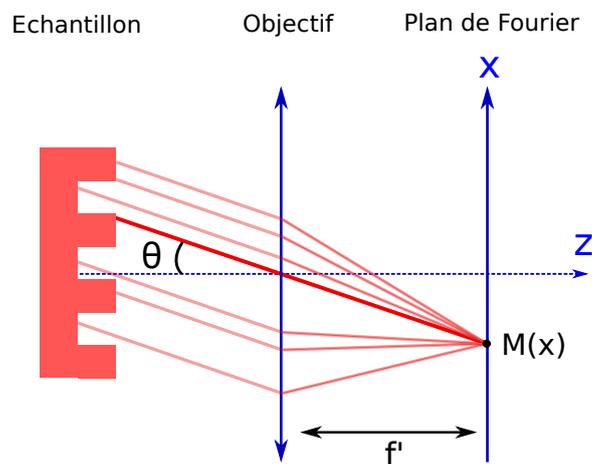


FIGURE 4.4 – Focalisation dans le plan de Fourier d'un faisceau de lumière émergent du système avec un angle θ par rapport à la normale .

Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.4, la mesure de l'intensité selon l'axe verticale x du plan de Fourier permet de connaître l'intensité de l'émission de lumière du système dans le plan perpendiculaire au réseau, dans la direction inclinée d'un angle θ par rapport à la normale. En effet, l'intensité mesurée au point

$M(x)$ correspond à l'intensité de la lumière émise par l'ensemble du système dans la direction inclinée d'un angle θ par rapport à la normale avec $x = f' \sin(\theta)$.

Résultats expérimentaux La mesure de $I_0(\lambda, \sin \theta)$ est présentée dans la figure 4.5a.

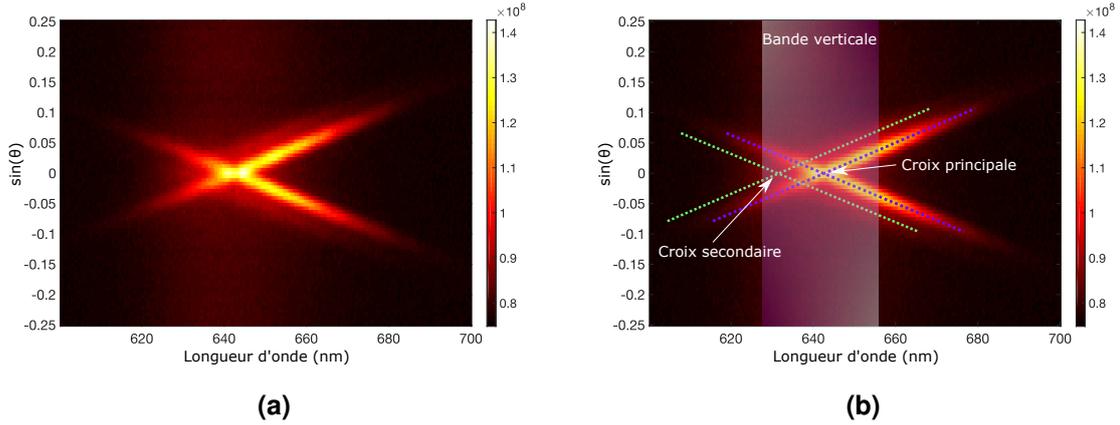


FIGURE 4.5 – (a) Mesures angulaires et spectrales de l'émission de lumière du système. (b) Motifs observables

Cette mesure représente l'intensité de l'émission de lumière de l'échantillon en fonction de la longueur d'onde d'émission, et de l'angle d'émission dans le plan perpendiculaire au réseau. Nous observons 3 motifs distincts (Fig4.5b) :

- Une croix principale, centrée en (642 nm, 0).
- Une croix secondaire, plus faible en intensité que la première, et légèrement décalée vers les petites longueurs d'ondes, centrée en (635 nm, 0).
- Une bande verticale entre 630 nm et 655 nm.

Nous allons maintenant mettre en évidence que ces motifs sont la signature d'une directivité, d'une polarisation et d'un spectre d'émission différents de ceux d'une couche de BQs non structurée.

A.1. Directivité d'émission

Nous constatons que les directions d'émission de lumière de l'échantillon ne sont pas les mêmes que celles d'une couche de BQs non structurées, qui émet de la lumière de manière isotrope. En effet, ce motif de croix nous renseigne sur le fait que le système émet de la lumière dans certains angles privilégiés, et ces angles d'émissions changent avec la longueur d'onde. Pour $\lambda = 642$ nm, nous avons une émission de

lumière normale à l'échantillon (Fig 4.6a) tandis que pour $\lambda = 660$ nm, nous avons une émission de lumière autour des angles $\theta = 3.2^\circ$ et $\theta = -3.2^\circ$ (Fig4.6b). Par ailleurs ces pics d'émission ont une largeur angulaire étroite de $\Delta\theta = 1.7^\circ$, ce qui est la signature d'une cohérence spatiale de la source [GREFFET et al. 2002].

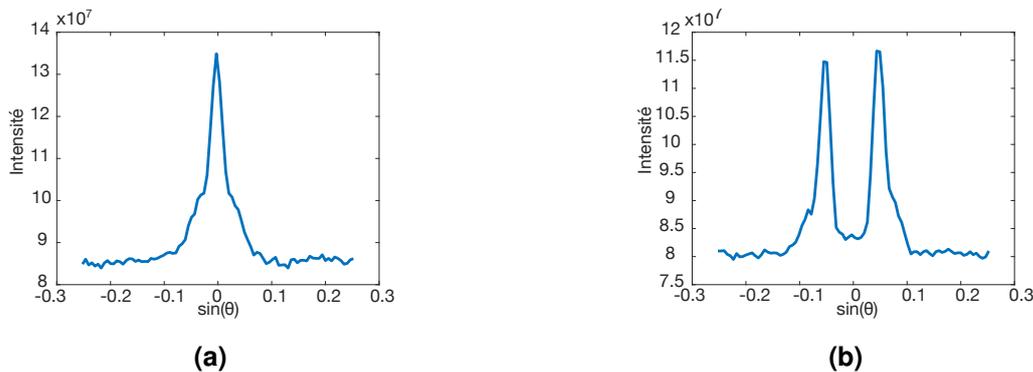


FIGURE 4.6 – Intensité de l'émission de lumière en fonction de l'angle d'émission à $\lambda = 642$ nm (a) et à $\lambda = 660$ nm (b)

Nous comparons ces résultats avec une simulation de l'absorption d'une couche de BQs de même épaisseur, sans réseau (Fig4.7). Cette simulation est réalisée avec les codes utilisés dans le chapitre précédent, permettant de résoudre les équations de Maxwell dans des systèmes stratifiés. Le modèle d'indice utilisé sera présenté plus loin dans le chapitre.

Nous observons dans les résultats de notre calcul, l'absence d'une dépendance angulaire de l'absorption de lumière quand la couche de BQs n'est pas structurée.

Nous rappelons que dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, l'émission de lumière d'un système thermalisé en cavité résulte de son absorption pondérée par la fonction de Planck. Ainsi, les motifs visibles en émission le sont tout autant en absorption. Par conséquent, l'émission d'une telle couche non structurée de BQs n'a aucune dépendance angulaire.

Il est ainsi clair que c'est le réseau qui induit des directions d'émissions privilégiées, et qui est donc à l'origine de ce motif de croix dans la mesure expérimentale. Les effets du réseau vis-à-vis de la directivité de la source seront présentés dans la dernière partie de ce chapitre.

Enfin, la bande d'émission est présente aussi dans le calcul de l'absorption mais

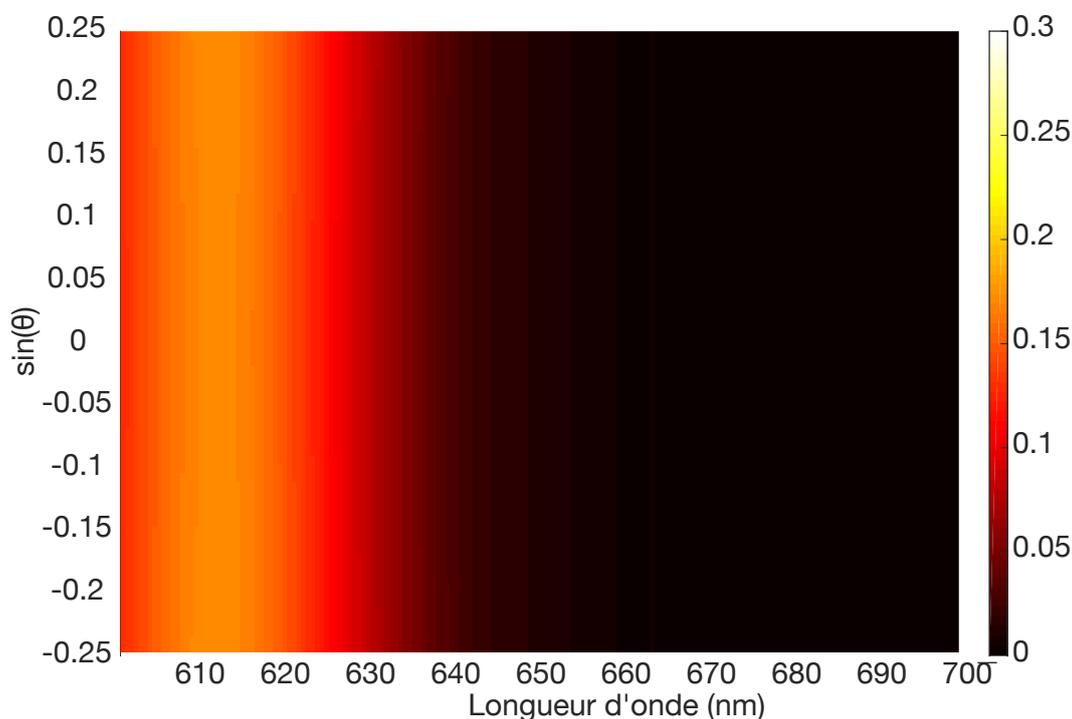


FIGURE 4.7 – Calcul de l’absorption d’une couche de boîtes quantiques non structurée en fonction de l’angle θ et de la longueur d’onde λ .

à une autre longueur d’onde. Nous expliquerons ce décalage spectral par la suite.

A.2. Polarisation d’émission

Nous rappelons que le réseau du système est une succession de barres verticales dont le rapport d’aspect $A = \frac{\text{Longueur}}{\text{Largeur}}$ est très supérieur à 1000. Nous attendons ainsi une polarisation d’émission linéaire principalement verticale (0°), c’est à dire dans la même direction que les barres du réseau.

Les mesures angulaires et spectrales de l’émission de lumière du système dans les polarisations linéaires à 0° et 90° sont présentées dans la figure 4.8b. Nous observons tout d’abord que l’émission de lumière est très majoritairement polarisée linéairement à 0° . En effet, dans la mesure de la polarisation à 90° , nous n’observons qu’une croix de faible intensité centrée en $\sin \theta = 0$ et $\lambda = 635\text{nm}$, qui correspond à la croix secondaire observée dans la figure 4.5b tandis que dans la mesure de la polarisation à 0° , nous observons la croix principale intense, et la croix secondaire. Du fait de la présence de cette croix secondaire dans les mesures réalisées dans les deux polarisations, il n’est

pas évident d'attribuer un motif d'émission à l'une ou à l'autre des polarisations, même si nous pouvons quand même affirmer que la croix principale observée dans la figure 4.5a est issue de l'émission polarisée à 0° .

Enfin nous observons que la bande d'émission n'est pas affectée par la polarisation.

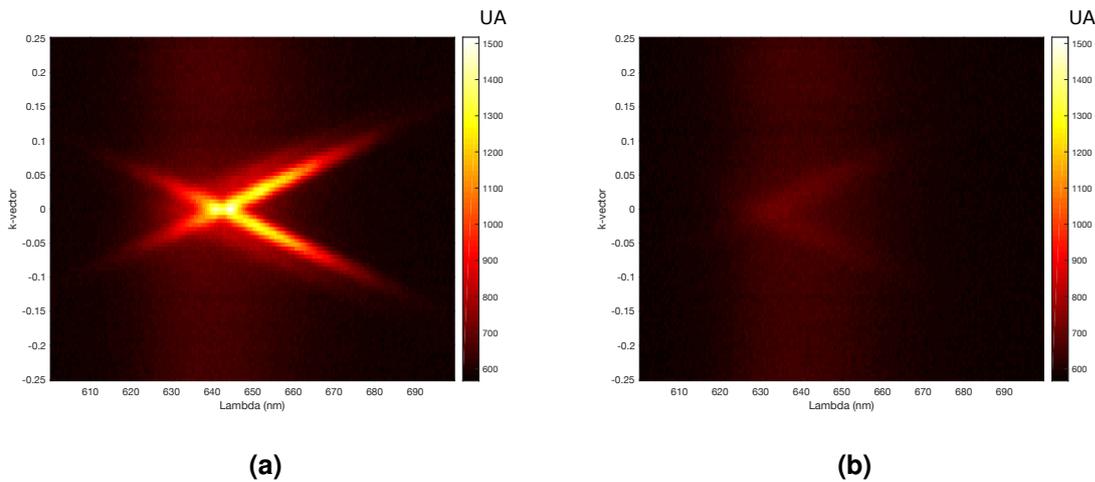


FIGURE 4.8 – Mesures angulaires et spectrales de l'émission de lumière du système dans la polarisation linéaire à 0° (a) et 90° (b)

A.3. Modifications spectrales

Les BQs utilisées ont un pic d'absorption autour de 615 nm, nous pourrions donc nous attendre à avoir une émission de lumière du système aux alentours de ce pic. Ce n'est pas du tout ce que nous observons dans les mesures expérimentales réalisées. Tout d'abord, nous observons un décalage spectral d'environ 30 nm entre le maximum d'émission du système et le pic d'absorption des BQs (Fig4.5a), et ensuite, comme nous pouvons le voir dans la figure 4.9, le système émet encore de la lumière à 660nm, soit 50nm plus loin que le pic d'absorption des BQs.

Ce décalage est en contradiction avec la compréhension usuelle de l'émission du système comme étant la somme incohérente d'une assemblée de dipôles. En effet, un dipôle unique est susceptible d'émettre de la lumière uniquement aux longueurs d'ondes où il absorbe de la lumière.

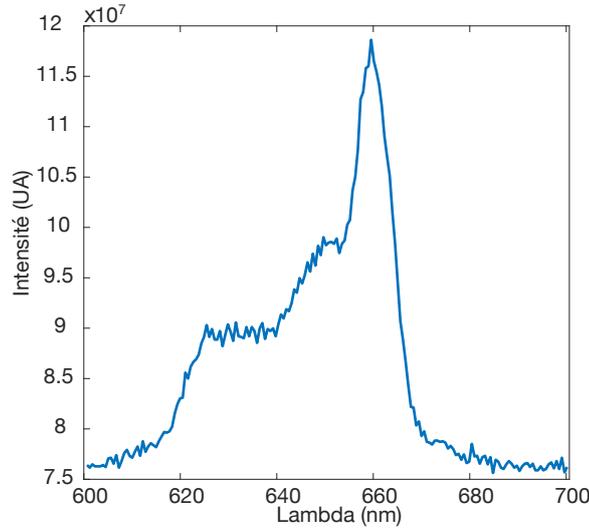


FIGURE 4.9 – Spectre d'émission du système à $\theta = 3.8^\circ$.

B. Discussion

Nous avons mis en évidence les propriétés particulières de directivité, de polarisation et de spectre d'émission de notre système d'étude. Nous allons maintenant simuler l'émission de lumière de ce système dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé après avoir montré que les hypothèses d'application d'un tel modèle sont vérifiées. Enfin, nous confronterons le résultat de ces calculs avec les mesures expérimentales afin de tirer des conclusions sur les mécanismes d'émissions de lumière responsables des propriétés particulières de directivité, de polarisation et de spectre d'émission du système.

B.1. Prérequis à l'application du modèle de Kirchhoff généralisé

Comme cela a été montré dans le Chapitre 1, le modèle de Kirchhoff généralisé permet de décrire l'émission de lumière d'une assemblée thermalisée en cavité. Nous allons donc identifier la cavité dans ce système, et montrer que les BQs se thermalisent après l'excitation du système.

Résonateur et mode Le système d'étude est un empilement de couches où la partie réelle de l'indice optique de chaque couche est différent et constante entre 600 nm et 700 nm. A la base du système, il y a la couche de résine epoxy d'indice optique $n_{Epoxy} = 1.53$. Au centre il y a la couche de BQs dont l'indice optique mesuré par ellipsométrie est $n_{Couche} = 1.78$. Et au sommet il y a le réseau composé de rubans de boîtes quantiques qui occupent la moitié d'une période du réseau ($f = 50\%$),

l'air occupant l'autre moitié. L'indice effectif de cette couche est pris comme étant la moyenne des indices de l'air et des BQs, soit $n_{\text{Reseau}} = \frac{n_{\text{Air}} + n_{\text{Couche}}}{2} = 1.39$.

La structure d'empilement de couche avec $n_{\text{Couche}} > n_{\text{CReseau}}, n_{\text{Epoxy}}$ est un guide d'onde : des modes guidés peuvent exister dans la couche de BQs.

Guide d'onde et modes guidés Considérons une couche homogène, d'indice n , d'épaisseur e selon x , infinie selon y et z , comprise entre 2 couches d'indice n_+ et n_- , infinies selon les 3 axes x , y et z (Fig 4.10).

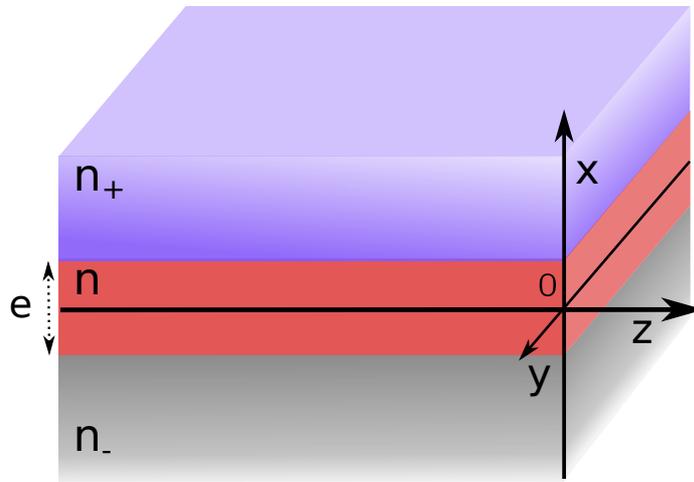


FIGURE 4.10 – Schéma de la structure d'un guide d'onde planaire.

Nous nous intéressons aux modes guidés dans la couche centrale, c'est-à-dire à la distribution de champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ qui satisfait les équations de Maxwell, qui s'annule pour $x \rightarrow \pm\infty$, et qui se propage selon z avec la constante de propagation k_z .

Nous nous intéressons particulièrement à la propagation selon z du champ électrique transverse dans la couche centrale comprise entre $-\frac{e}{2}$ et $\frac{e}{2}$ qui satisfait l'équation de propagation (4.1) :

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + [k_0^2 n^2 - k_z^2] E_y = 0 \quad (4.1)$$

avec $k_0 = (\frac{2\pi}{\lambda})^2$.

Pour certaines valeurs de k_z tel que $k_0^2 n^2 - k_z^2 > 0$, il existe des solutions oscillantes dans le guide d'onde de la forme :

$$E_y(x) = A \cos(\alpha x) + B \sin(\alpha x) \quad (4.2)$$

avec $\alpha^2 = k_0^2 n^2 - k_z^2 > 0$, et A et B des constantes.

Ainsi des modes de vecteur d'onde α sont supportés par le guide d'onde. Le guide d'onde joue donc le rôle de cavité en admettant des modes guidés auxquels l'assemblée de BQs peut se coupler.

Emission de lumière par une couche homogène Nous allons voir que, du faite de la grande densité de BQs dans la couche centrale, les BQs peuvent se thermaliser. Il sera ainsi possible d'adopter une description des mécanismes d'émission de lumière semblable à celle décrivant l'émission d'une couche de semi-conducteur à la température T et au potentiel chimique de radiation μ .

Les BQs de ce système peuvent absorber un rayonnement ultraviolet, ce qui permet de peupler en électrons les plus hauts niveaux d'énergie de ces BQs. Du fait de l'interaction des électrons entre eux, ou des interactions entre les électrons et les phonons, il y a un échange d'énergie qui s'opère avec l'environnement, dans des temps caractéristiques de l'ordre de la picoseconde. Ces échanges d'énergies permettent aux électrons d'entrer dans une situation d'équilibre thermodynamique local gouverné par une température T et un quasi-niveau de Fermi μ_c . Cet équilibre se met en place avant que les électrons et les trous ne se recombinent, en quelques nanosecondes, pour émettre de la lumière. Les électrons sont donc maintenant répartis selon une distribution de Fermi-Dirac paramétrée par T et μ_c sur les niveaux d'énergie des BQs.

Les mêmes mécanismes sont à l'œuvre pour les trous, qui sont alors en équilibres entre eux à la température T et au quasi niveau de Fermi μ_v . Ces populations d'électrons et de trous étant en équilibres thermodynamiques locaux, nous pouvons considéré que le système est thermalisé.

Par conséquent, au lieu de considérer l'émission distincte de chacune des BQs pour rendre compte de l'émission globale de l'assemblée, nous allons traiter le problème comme étant celui de l'émission de lumière par une couche thermalisée homogène de semi-conducteur à la température T et au potentiel chimique de radiation $\mu = \mu_c - \mu_v$.

Couplage de la couche thermalisée avec le mode guidé Nous nous plaçons dans le cadre de l'électrodynamique fluctuotionnelle qui décrit comment un système thermalisé émet de la lumière. Un tel système thermalisé excite des courants fluc-

tuants aléatoires qui rayonnent. Ces courants rayonnent avec un spectre de corps noir à la température T et au potentiel chimique de radiation $\mu = \eta_c - \eta_v$, pondéré par le spectre d'absorption des BQs de la couche. Mais ces courants rayonnent dans un environnement donné, ici en se couplant avec le mode guidé de la couche. C'est enfin le réseau qui permet au mode guidé de se coupler aux modes du vides, et donc au système d'émettre de la lumière.

La puissance émise dans une certaine direction θ , à une longueur d'onde λ et dans une polarisation $i = TE, TM$ est la suivante :

$$P_e(\lambda, \theta, i, \mu) = \iiint_V \alpha_{abs}(\lambda, \theta, i, \vec{r}, \mu) dV * \frac{2hc^2}{\lambda^5} * \frac{1}{\exp(\frac{hc}{kT\lambda} - \frac{\mu}{kT}) - 1}. \quad (4.3)$$

Nous rappelons que pour $\frac{hc}{\lambda} \gg \mu$, nous pouvons simplifier la formule précédente et obtenir :

$$P_e(\lambda, \theta, i, \mu) = \iiint_V \alpha_{abs}(\lambda, \theta, i, \vec{r}, \mu) dV \frac{2hc^2}{\lambda^5} \exp(-\frac{hc}{kT\lambda}) \exp \frac{\mu}{kT} \quad (4.4)$$

Rappelons que le taux d'absorption local $\alpha_{abs}(\theta, \lambda, i, \vec{r}, \mu)$ correspond à l'absorption en chaque point du système après que ce dernier ait été pompé, et contient toute l'information sur la géométrie du système et caractérise l'effet de confinement du champ par le résonateur, tandis que le terme $\frac{2hc^2}{\lambda^5} * \frac{1}{\exp(\frac{hc}{kT\lambda} - \frac{\mu}{kT}) - 1}$ contient l'information sur le spectre d'émission des courants fluctuants. C'est dans le premier terme que le couplage de l'émission de lumière des courants fluctuants au mode guidé, et le couplage du mode guidé au modes du vide via le réseau sont pris en compte.

B.2. Simulation de l'émission de lumière du système

Après avoir exposé les hypothèses d'application du modèle de Kirchhoff généralisé, nous allons maintenant simuler l'intensité de l'émission de lumière du système :

$$I_0(\lambda, \theta, \mu) = \sum_{i=TE, TM} P_e(\lambda, \theta, i, \mu) C(\lambda, \theta, i) \Delta t \quad (4.5)$$

avec $C(\lambda, \theta, i)$ la fonction de réponse de l'ensemble du système expérimental et Δt le temps d'intégration du spectromètre.

Nous allons dans un premier temps, calculer la puissance émise par le système

$P_e(\lambda, \theta, i, \mu)$ en calculant notamment l'absorption dans les BQs et dans un second temps, nous montrerons comment nous avons simulé la fonction simulant la réponse optique des composants du système expérimental $C(\lambda, \theta)$.

Calcul de la puissance émise par le système Le calcul de la puissance émise par le système $P_e(\lambda, \theta, i, \mu)$ (Equ 4.3) se réalise en deux étapes. Tout d'abord nous calculons l'absorption dans les BQs grâce à des codes similaires à ceux utilisés dans les chapitres 2 et 3, permettant de résoudre les équations de Maxwell dans des systèmes stratifiés. Nous multiplions ensuite cette absorption par la fonction de Planck avec des paramètres T et μ ajustés.

Pour calculer l'absorptivité du système, nous avons besoin de :

- la géométrie du système (épaisseur des couches, période du réseau, hauteur du réseau...).
- l'indice optique $n(\lambda, \mu) = n'(\lambda, \mu) + in''(\lambda, \mu)$ en tout point du système.

Nos méthodes numériques de simulations nous permettent ensuite :

- D'envoyer une onde plane de puissance unitaire, de longueur d'onde λ , avec un angle d'incidence θ et une polarisation i .
- De calculer la partition de la puissance incidente réfléchiée et transmise à chaque interface, et donc la partition de la puissance absorbée dans les couches car

$$P_{Absorbée} = P_{inc} - P_{ref} - P_{tr}.$$

Nous calculons ainsi une carte de l'absorption dans la couche de BQs dans le plan (λ, θ) :

$$Abs(\lambda, \theta, \mu) = \sum_{i=TE, TM} \iiint_V \alpha_{abs}(\lambda, \theta, i, \vec{r}, \mu) dV = \sum_{i=TE, TM} \frac{P_{Absorbée}(\lambda, \theta, i, \mu)}{P_{inc}(\lambda, \theta, i)} \quad (4.6)$$

pour $\lambda \in [600 \text{ nm}; 700 \text{ nm}]$, $\theta \in [-14, 5^\circ; 14, 5^\circ]$ et dans les polarisations linéaire TE et TM.

Discussion sur l'indice optique Pour le calcul de l'absorption dans les BQs $Abs(\lambda, \theta)$, il est nécessaire de connaître l'indice optique de cette couche de BQ entre 600 nm et 700 nm.

Faisons tout d'abord un point sur le rôle de l'indice optique dans l'absorptivité

du système. La partie réelle de l'indice n' de chaque composante de la structure rend compte, associée à la géométrie de chaque composante, de la manière dont le champ électrique est confiné dans la structure; c'est le contraste d'indice dans les différentes couches qui est responsable de la présence de mode guidé. La partie imaginaire de l'indice optique n'' témoigne de la capacité d'une composante de la structure à absorber du rayonnement (et donc à émettre du rayonnement). En effet, un matériau avec $n'' = 0$ est totalement transparent.

Ainsi, il est nécessaire de connaître n' pour chacune des couches entre 600nm et 700nm car c'est cette grandeur qui, associée à la géométrie de la structure, permet de rendre compte des caractéristiques du mode guidé dans la couche de BQs. Par contre, seule la connaissance de n'' dans la couche de BQs est pertinente, car c'est bien cette couche qui est à l'origine de l'émission de lumière du système. En effet, la couche d'epoxy et le substrat ont une valeur de n'' non nulle entre 600 et 700 nm, mais comme ces composantes ne sont pas excitées par la pompe, elles n'émettrons pas de lumière.

Une mesure d'indice par ellipsométrie donne accès à l'indice optique de l'empilement total, et ne permet pas de discriminer l'absorption due à la couche de BQs des autres pertes ailleurs dans l'empilement. Par ailleurs, elle ne contient pas l'information sur la dépendance de l'indice au potentiel chimique. En pratique donc, nous ne pouvons exploiter la mesure d'indice de l'empilement réalisée par ellipsométrie.

Dès lors nous avons extrait la partie imaginaire de l'indice optique des BQs à partir des mesures expérimentales de l'émission du système et de nos simulations.

Extraction de la partie imaginaire de l'indice de la couche de BQs Pour ce faire, nous prenons une coupe à un angle θ_{Ref} de la mesure de l'émission de lumière. Cette coupe est donc le spectre d'émission à l'angle θ_{Ref} , $I_0(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)$, et dans le cadre du modèle de Kirchhoff généralisé, ce spectre s'écrit sous la forme :

$$I_0(\lambda, \theta_{Ref}, \mu) = \sum_{i=TE, TM} P_e(\lambda, \theta_{Ref}, i, \mu) C(\lambda, \theta_{Ref}, i) \Delta t \quad (4.7)$$

Nous normalisons ensuite ce spectre $I_0(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)$ par son maximum d'émission c'est-à-dire par la valeur d'intensité mesurée à $\lambda_{Ref} = 642$ nm. En combinant les équations 4.4, 4.5 et 4.6, et en supposant que la fonction de réponse de l'ensemble du système expérimental varie peu sur la plage d'intérêt d'angles et de longueurs d'onde, ce rapport peut se mettre sous la forme suivante :

$$\frac{I_0(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)}{I_0(\lambda_{Ref}, \theta_{Ref}, \mu)} = \frac{Abs(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)}{Abs(\lambda_{Ref}, \theta_{Ref}, \mu)} \left(\frac{\lambda_{Ref}}{\lambda} \right)^5 \exp \frac{hc}{kT} \left(\frac{1}{\lambda_{Ref}} - \frac{1}{\lambda} \right) \quad (4.8)$$

En faisant ce rapport, nous faisons disparaître le paramètre μ que nous ne pouvons pas déterminer. Le terme $\left(\frac{\lambda_{Ref}}{\lambda} \right)^5 \exp \frac{hc}{kT} \left(\frac{1}{\lambda_{Ref}} - \frac{1}{\lambda} \right)$ peut être calculé analytiquement, le terme $\frac{I_0(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)}{I_0(\lambda_{Ref}, \theta_{Ref}, \mu)}$ peut être déterminé avec les résultats expérimentaux et nous calculons le terme $Abs(\lambda_{Ref}, \theta_{Ref}, \mu)$ en imposant une valeur arbitraire à la partie imaginaire de l'indice de la couche de BQs $n''(\lambda_{Ref}, \mu)$.

Enfin, nous réalisons un ajustement de paramètre sur la partie imaginaire de l'indice de la couche de BQs $n''(\lambda, \mu)$ dans le calcul du terme $Abs(\lambda, \theta_{Ref}, \mu)$ afin que l'égalité 4.8 soit vérifiée.

Comme nous avons choisi une valeur arbitraire pour $n''(\lambda_{Ref}, \mu)$, l'estimation de $n''(\lambda, \mu)$ obtenue par cette méthode est fidèle à la véritable valeur de $n''(\lambda, \mu)$ à un facteur multiplicatif près, constant avec la longueur d'onde.

Par conséquent, en utilisant cette valeur d'indice dans notre calcul de $Abs(\lambda, \theta, \mu)$, nous ne pouvons prétendre qu'à une estimation qualitative de l'absorption dans les BQs, mais dont les variations avec la longueur d'onde sont les mêmes que celle de la véritable absorption de la couche de BQs du système.

Fonction de Planck Nous multiplions la carte d'absorption obtenir par la fonction de Planck en réalisant un ajustement de paramètre sur la température T . La température est ajustée de telle sorte que la position spectrale du maximum d'émission simulé coïncide avec celle du maximum d'émission tel qu'observé expérimentalement. Quand au potentiel chimique de radiation, dans la mesure ou nous n'avons pas d'informations sur la puissance absorbée par le système lors du pompage de ce dernier, il nous est impossible d'estimer la valeur de μ . Par ailleurs, ce dernier agit comme une constante multiplicative de l'ensemble du signal via le terme $\exp \frac{\mu}{kT}$ (Equ4.4), ainsi malgré son absence, il est possible de retrouver une estimation qualitative de la

mesure, c'est à dire les différents motifs observables aux bons angles et aux bonnes longueurs d'onde.

Prise en compte de l'imagerie Enfin, pour rendre compte des résultats expérimentaux, nous devons prendre en compte une fonction simulant la réponse des composants du système de mesure $C(\lambda, \theta, i)$. En effet, dans le dispositif expérimental, l'image d'un point du plan de Fourier sur la caméra est au mieux une tâche d'Airy du fait de la taille finie des optiques utilisées. Ainsi, nous convoluons nos simulations par une fonction d'Airy pour rendre compte de cette problématique.

Le résultat final du calcul est montré dans la figure 4.11a.

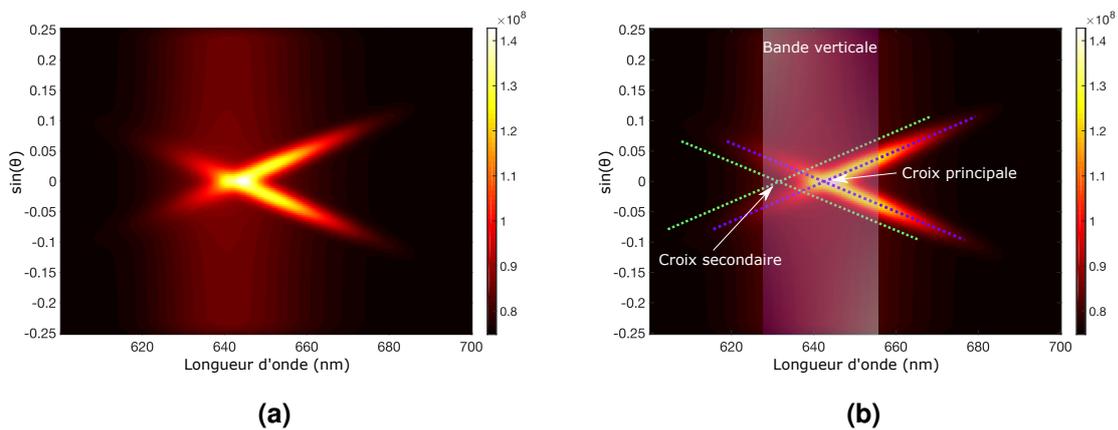


FIGURE 4.11 – (a) Résultat du calcul de l'intensité d'émission du système. (b) Superposition des motifs observables dans les mesures expérimentales avec les résultats du calcul de l'intensité d'émission du système.

B.3. Analyse des résultats

Tout d'abord, nous pouvons constater que les résultats de nos simulations sont en grande partie en adéquation avec les résultats expérimentaux. Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.11b où nous avons superposé les motifs observables dans les mesures expérimentales avec les résultats des simulations, nous retrouvons la croix principale centrée en $\lambda = 642$ nm et $\sin \theta = 0$, ainsi que la bande d'émission entre 630 nm et 655 nm. Nous retrouvons dans notre simulation à $\lambda = 642$ nm une émission normale à l'échantillon (Fig4.12a), et à $\lambda = 642$ nous trouvons deux pics d'émission centrés autour de $\theta = 3.5^\circ$ et $\theta = -3.5^\circ$ de largeur angulaire $\Delta\theta = 1.4^\circ$ (Fig4.12b),

très proche des pics d'émission expérimentaux centrés autour des angles $\theta = 3.2^\circ$ et $\theta = -3.2^\circ$ de largeur angulaire $\Delta\theta = 1.7^\circ$.

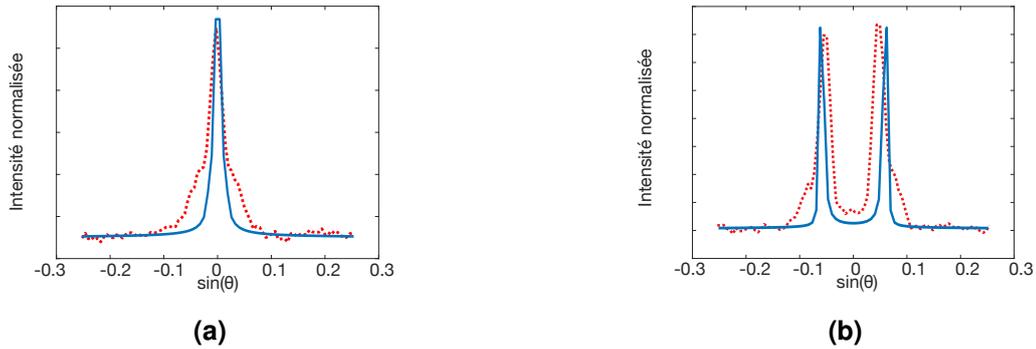


FIGURE 4.12 – Calcul (bleu plein) et mesure (rouge pointillé) de l'intensité de l'émission de lumière en fonction de l'angle d'émission à $\lambda = 642$ nm (a) et à $\lambda = 660$ nm (b)

Ainsi, le résultat de nos simulations rend compte des propriétés de directivité d'émission du système, et du décalage spectral entre l'émission du système et l'émission d'une couche de BQs non structurée de même épaisseur.

Enfin, nous ne retrouvons pas dans nos simulations la croix secondaire. L'absorption calculée dans la couche de BQs d'une onde plane polarisée linéairement à 90° est en effet constante sur la plage de longueur d'onde d'intérêt et ne présente aucune structure particulière. Nous pensons donc que cette croix secondaire présente dans les mesures expérimentales de l'intensité d'émission du système, ainsi que dans les mesures d'intensité dans les polarisations linéaires à 0° et 90° (Fig 4.8) résulte d'un mauvais alignement des lames d'ondes dans le dispositif expérimental.

L'adéquation des résultats de nos calculs avec les mesures expérimentales nous permet donc d'affirmer que le modèle de Kirchhoff généralisé est performant pour décrire l'émission de lumière d'un tel système. Nous allons donc interpréter les mécanismes d'émission associés au modèle qui régissent l'émission de lumière de ce système, et plus particulièrement, nous allons essayer de comprendre les propriétés particulières de directivité, de polarisation et de spectre d'émission de ce système.

Contrôle de la directivité et de la polarisation d'émission par le réseau

C'est via le couplage du mode guidé aux modes du vide par le réseau qu'apparaît le contrôle en direction et en polarisation de l'émission de lumière du système. En effet, il est bien connu qu'un réseau diffracte la lumière dans des directions privilégiées. Nous verrons plus en détail l'impact du réseau vis-à-vis de la directivité d'émission du système dans la dernière partie de ce chapitre.

Ensuite, nous pouvons interpréter la présence de la bande d'émission comme étant l'émission directe de la couche homogène thermalisée, non diffractée par le réseau.

Enfin, le réseau étant composé d'un ensemble de rubans verticaux, l'émission dans la polarisation linéaire à 0° , c'est-à-dire dans l'axe des rubans du réseau (Fig4.1), est largement prépondérante par rapport à l'émission dans la polarisation linéaire à 90° .

Contrôle du spectre d'émission Comme cela a été relevé précédemment, il y a un décalage spectral d'environ 40 nm entre le pic d'absorption des BQs et le pic d'émission de la structure. Ce comportement est incompréhensible si l'on considère que l'émission de lumière de l'ensemble des BQs n'est que la superposition de l'émission de lumière de dipôles indépendants. En effet, dans ce cas, le rayonnement des BQs est simplement filtré par les modes guidés de la couche, et le maximum d'émission coïncide avec le maximum d'absorption des BQs (Fig 4.13a).

Comme nous pouvons le voir dans l'équation 4.3, le spectre d'émission du système résulte du spectre d'absorption dans les BQs pondéré par le spectre de corps noir à la température T et au potentiel chimique de radiation μ .

Attention, le spectre d'absorption par la structure contenant les boîtes quantiques dépend du potentiel chimique de deux façons : d'une part l'absorption intrinsèque par chaque boîte dépend de l'occupation des différents niveaux, d'autre part, l'absorption par la structure dépend de son indice qui dépend lui-même de μ .

Ce n'est donc pas le spectre d'émission des BQs qui est filtré par les modes guidés de la couche, mais bien le spectre de corps noir des courants fluctuants (Fig 4.13b). Or ce spectre de corps noir est plus large que le spectre d'émission d'une assemblée incohérente de BQs, ce qui permet d'aller exciter des modes guidés de la couche de BQs qui étaient inaccessible spectralement par une assemblée incohérente de BQs.

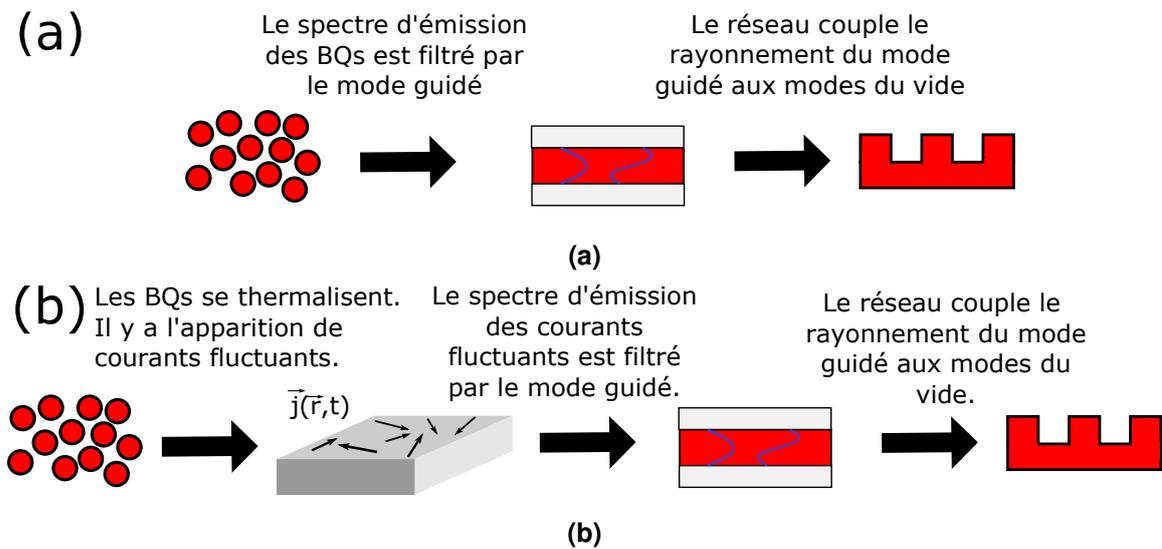


FIGURE 4.13 – a) Illustration du mécanisme d'émission de lumière dans le cadre de l'émission de lumière par un ensemble indépendant de BQs. b) Illustration du mécanisme d'émission de lumière dans le cadre de l'émission de lumière par un ensemble thermalisé de BQs.

C'est donc pour cela que le système émet de la lumière dont la longueur d'onde est éloignée spectralement de plus de 50 nm de la longueur d'onde du pic d'absorption des BQs.

Par ailleurs, le maximum de ce spectre d'émission résulte de la multiplication du spectre d'émission des BQs multiplié par la fonction de Planck. Ainsi, c'est en grande partie la température T des BQs qui va gouverner la position du maximum d'émission de ces courants fluctuants. C'est donc pour cette raison que le pic d'émission du système est décalé par rapport au pic d'absorption des BQs, et que la bande d'absorption présente dans le calcul de l'absorption sans réseau (Fig 4.7) est décalée par rapport à la bande d'émission (Fig 4.5b).

III. Étude de l'intensité dans le plan de Fourier

Nous allons dans cette partie nous intéresser tout particulièrement à la structuration de la directivité et de la polarisation d'émission par le réseau. Pour ce faire nous

étudierons l'intensité de l'émission de lumière du système dans le Plan de Fourier, et cela pour différentes polarisations.

Des mesures ont été réalisées sur un montage expérimental semblable à celui présenté précédemment, à l'exception du fait que le plan de Fourier de l'objectif de collection est directement imagé sur une caméra CCD (Fig 4.14). Il n'y a plus de spectromètre.

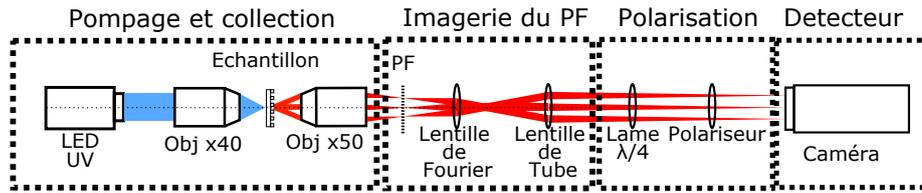


FIGURE 4.14 – Dispositif expérimental de mesure de l'intensité d'émission du système dans le plan de Fourier.

A. Contrôle de la directivité

Tout d'abord, nous rappelons que dans le montage optique présenté précédemment, le plan de Fourier est un plan particulier qui rend compte des angles d'émissions de lumière du système, et plus particulièrement des composantes k_x et k_y du vecteur d'onde \vec{k} de chaque onde plane émise par le système.

Soit un rayon lumineux émergent du réseau (Fig 4.15), se propageant selon z , et arrivant au centre de l'objectif, porté par un vecteur d'onde \vec{k} . Nous nous plaçons dans le repère cartésien $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$ centré sur le centre de l'objectif, et nous décomposons le vecteur \vec{k} tel que $\vec{k} = \vec{k}_\perp + k_{//}\vec{e}_z$ avec $k_{//} = k_x\vec{e}_x + k_y\vec{e}_y$. Les composantes k_x et k_y peuvent s'exprimer à partir des angles θ et δ de la manière suivante :

$$\begin{cases} k_x = \frac{2\pi}{\lambda} n \sin \theta \cos \delta \\ k_y = \frac{2\pi}{\lambda} n \sin \theta \sin \delta \end{cases} \quad (4.9)$$

Et le module de $k_{//}$ est : $\|k_{//}\| = \frac{2\pi}{\lambda} n \sin \theta$.

Sachant que l'ensemble des rayons de même $k_{//}$ convergent dans le plan de Fourier en un même point $M(x, y)$, il est possible de remonter à k_x et k_y en mesurant x et y .

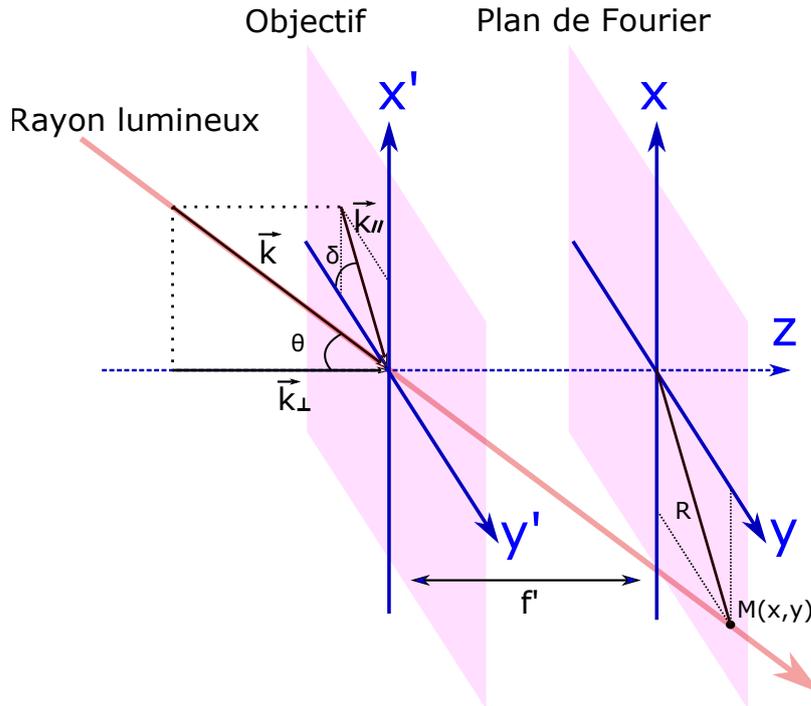


FIGURE 4.15 – Resultat du calcul de la relation de dispersion du système.

Nous savons que l'ensemble des rayons les plus inclinés par rapport à l'objectif et pouvant émerger de ce dernier sont les rayons tel que : $\|k_{//max}\| = \frac{2\pi}{\lambda} * O.N$ avec $O.N$ l'ouverture numérique de l'objectif. Ainsi, l'ensemble des points du plan de Fourier est compris dans un disque de rayon $R_{max} = O.N * f'$, et chaque point de ce disque est situé à la distance $R = \sin\theta * f'$ du centre du Plan de Fourier, et a pour coordonnées :

$$\begin{cases} x = R \cos \delta = \sin\theta \cos \delta f' = \frac{k_x \lambda f'}{2\pi n} \\ y = R \sin \delta = \sin\theta \sin \delta f' = \frac{k_y \lambda f'}{2\pi n} \end{cases} \quad (4.10)$$

Il est donc possible en mesurant l'intensité lumineuse dans le plan de Fourier, de connaître la puissance émise par le système dans les différentes directions d'émission.

Remarque Dans la partie 2.A, seul l'axe x du plan de Fourier est projeté sur la fente du spectromètre et est dispersé. Cela impose $\delta = 0^\circ$, et seul θ peut varier.

A.1. Mesures expérimentales

Les mesures de l'intensité dans le plan de Fourier pour deux systèmes dont les périodes de réseaux valent $p = 400 \text{ nm}$ et $p = 450 \text{ nm}$ sont montrées dans la figure 4.16.

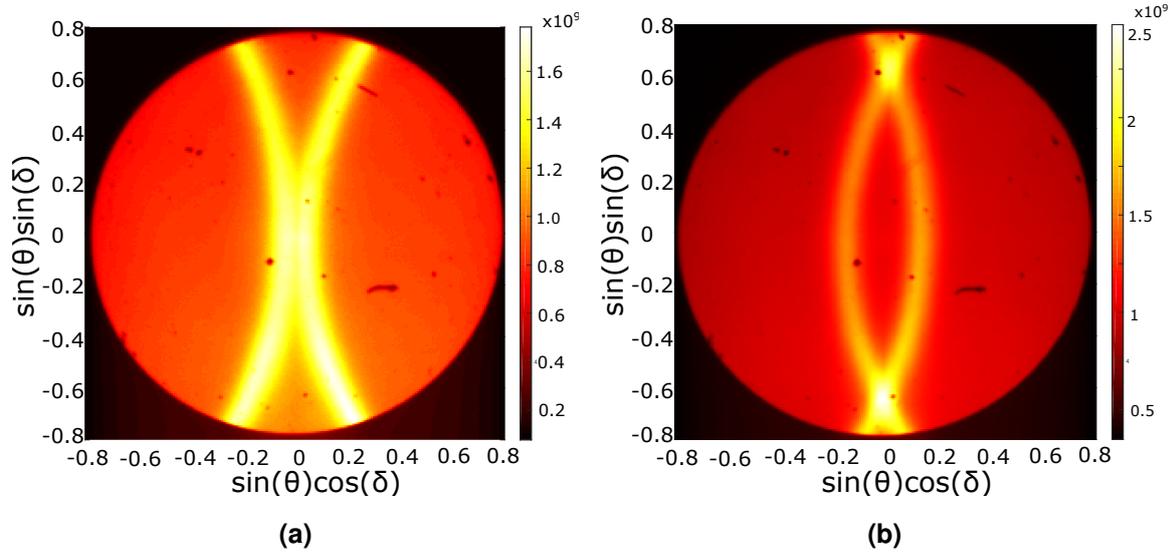


FIGURE 4.16 – Intensité dans le plan de Fourier en fonction des angles d'émission pour un réseau de période $p = 400$ nm (a) et $p = 450$ nm (b)

Tout d'abord nous pouvons constater que le disque d'observation du plan de Fourier a un rayon correspondant effectivement à l'ouverture numérique de l'objectif $O.N = 0.8$. Par ailleurs, nous observons que l'émission de lumière se fait selon 2 arcs de cercles, et que la position relative de ces arcs de cercles change avec la période du réseau. Pour le réseau de période $p = 400$ nm, il y a une maximum d'émission correspondant à l'intersection des 2 arcs de cercles pour $\theta = 0^\circ$, c'est à dire que ce réseau a un pic d'émission dans la direction normale au réseau. Pour le réseau de période $p = 450$ nm, nous avons deux pics d'émissions pour $\sin \theta = \pm 0.6$ et $\cos \delta = 0$, c'est à dire pour $\theta = \pm 37^\circ$ et $\delta = 0^\circ$.

A.2. Discussion

Nous allons maintenant interpréter l'allure de ces mesures en nous intéressant au couplage du modes guidé à l'espace libre par le réseau, nous montrerons ensuite les résultats de nos simulations que nous analyserons.

Couplage du mode guidé aux modes du vide Par définition du mode guidé, celui-ci est confiné dans la couche de BQs, et ne peut donc pas rayonner dans le vide. En effet, le module du vecteur d'onde du mode guidé est

$$\|k_{mode}^{\rightarrow}\| = \frac{2\pi}{\lambda} n'_{couche} \quad (4.11)$$

et l'on a

$$\|k_{mode}^{\vec{}}\| > \|k_{vide}^{\vec{}}\| = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (4.12)$$

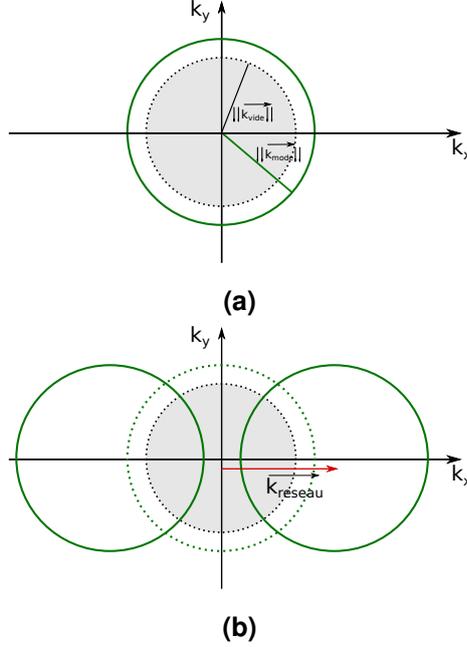


FIGURE 4.17 – a) Représentation du cercle de lumière et du cercle de rayon $\|k_{mode}^{\vec{}}\|$ dans le plan (k_x, k_y) b) Représentation de la translation en vecteur d'onde effectué par le réseau sur le mode guidé dans le plan (k_x, k_y)

avec k_{vide} le vecteur d'onde d'une onde plane se propageant dans le vide à la longueur d'onde λ . Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.17a, l'ensemble des points à l'intérieur du cercle de rayon $\|k_{vide}^{\vec{}}\|$ (cercle de lumière) correspond aux ondes planes susceptibles de se propager dans le vide, tandis que l'ensemble des points à l'extérieur de ce cercle correspondent aux champs électriques qui ne peuvent se propager dans le vide, et ne peuvent exciter que des ondes évanescentes à la surface de la couche. Dans cette même figure, l'ensemble des champs vérifiant $\|\vec{k}\| = \|k_{mode}^{\vec{}}\|$ est représenté par un cercle à l'extérieur du cercle de lumière.

C'est le réseau qui permet de coupler les excitations du mode guidé avec les modes du vides. En effet, le réseau va ajouter au vecteur d'onde du mode guide guidé une quantité dépendante de la période du réseau et de la longueur d'onde du rayonnement considéré :

$$\vec{k}_s = k_{mode}^{\vec{}} + k_{reseau}^{\vec{}} \quad (4.13)$$

avec \vec{k}_s le vecteur d'onde du rayonnement émergeant du réseau, et $k_{\text{réseau}}^{\rightarrow} = m \frac{2\pi}{\lambda} \vec{e}_x$ pour un réseau selon l'axe x .

Comme nous pouvons le voir dans la figure 4.17b, le cercle correspondant aux points tels que $\|\vec{k}\| = \|k_{\text{mode}}^{\rightarrow}\|$ est dupliqué, et chaque ordre est translaté selon l'axe k_x d'une quantité $m \frac{2\pi}{\lambda}$ pour les différents ordres $m \in \mathbf{Z}$ du réseau. Il peut donc exister un ordre m tel que $\vec{k}_s = k_{\text{vide}}^{\rightarrow}$, et il est ainsi possible aux modes guidés de rayonner dans les modes du vide.

Il est clair que ce que nous observons dans la figure 4.16 n'est autre que l'émission du mode guidé à travers les ordre $m = -1$ et $m = +1$ du réseau. De plus, du fait des périodes différentes entre ces 2 réseaux, les cercles correspondant au mode guidé ne sont pas translatés de la même quantité. Enfin, l'objectif utilisé ayant une ouverture numérique $O.N = 0.8$, seules les ondes planes tel que $\|\vec{k}_s\| < \|k_{//\text{max}}^{\rightarrow}\| = \frac{2\pi}{\lambda} * O.N$ sont collectées.

Résultats des simulations La méthode de calcul est similaire à celle présentée dans la partie précédente : nous envoyons des ondes planes de puissance $P = P_{\text{inc}}$ dans une polarisation TE ou TM avec différentes valeurs de (k_x, k_y) , et calculons la puissance absorbée P_{abs} par la couche de BQs, intégrée sur le spectre (car il n'y a plus de spectromètre). Il est ainsi possible de calculer la carte d'absorption du système $Abs(k_x, k_y)$:

$$Abs(k_x, k_y) = \sum_{i=TE, TM} \int_{\lambda} d\lambda \iiint_V \alpha_{\text{abs}}(\lambda, k_x, k_y, i, \vec{r}) dV = \sum_{i=TE, TM} \int_{\lambda} d\lambda \frac{P_{\text{Absorbée}}(\lambda, k_x, k_y, i)}{P_{\text{inc}}(\lambda, k_x, k_y, i)} \quad (4.14)$$

En multipliant cette absorption par la fonction de Planck, nous retrouvons l'allure de la puissance émise par le système dans le plan (k_x, k_y) (Fig 4.18).

Nous retrouvons dans les résultats de nos calculs les mêmes arcs de cercles que ceux des mesures expérimentales, et les pics d'émission pour les deux réseaux apparaissent dans les mêmes direction d'émission que dans les mesures expérimentales. Cela confirme la validité de notre modèle pour décrire les direction d'émissions privilégiés d'un tel système structuré.

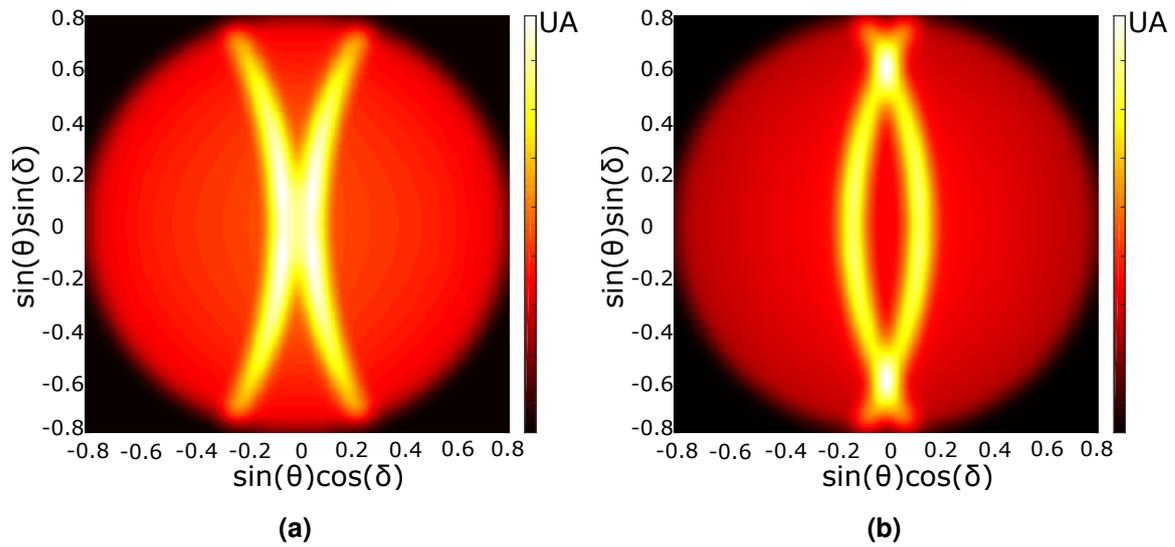


FIGURE 4.18 – Simulation de l'intensité dans le plan de Fourier en fonction des angles d'émission pour un réseau de période $p = 400$ nm (a) et $p = 450$ nm (b)

B. Contrôle de la polarisation

Nous avons déjà vu partiellement dans la partie 2.B.1 que le réseau affectait la polarisation d'émission du système dans le plan d'incidence, nous allons maintenant voir que l'état de polarisation de la lumière émergeant du système d'étude change avec la direction d'émission.

B.1. Résultats expérimentaux

Des mesures de l'intensité dans le plan de Fourier dans une polarisation donnée ont été réalisées avec le montage, en jouant sur l'angle relatif entre le polariseur et la lame quart d'onde.

Les mesures des intensités dans les polarisations rectilignes à 0° et 90° , ainsi que dans les polarisations circulaires droites et gauches ont été réalisées afin de calculer deux des paramètres de Stokes permettant de partiellement connaître l'état de polarisation de la lumière émise pour les différents angles d'émission.

Rappelons que le vecteur de Stokes est un vecteur de 4 composantes décrivant en intégralité l'état de polarisation d'un champ électrique. Il se présente sous la forme :

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \quad (4.15)$$

avec

$$\begin{cases} S_0 = I_{0^\circ} + I_{90^\circ} \\ S_1 = I_{0^\circ} - I_{90^\circ} \\ S_2 = I_{45^\circ} - I_{135^\circ} \\ S_3 = I_{CD} - I_{CG} \end{cases} \quad (4.16)$$

ou I_{ϕ° représente l'intensité mesurée dans la polarisation linéaire à ϕ° avec $\phi = 0^\circ$ correspondant à la polarisation verticale parallèle aux rubans du réseau, I_{CD} et I_{CG} représentent les intensités mesurées dans les polarisation circulaires droites et circulaire gauche.

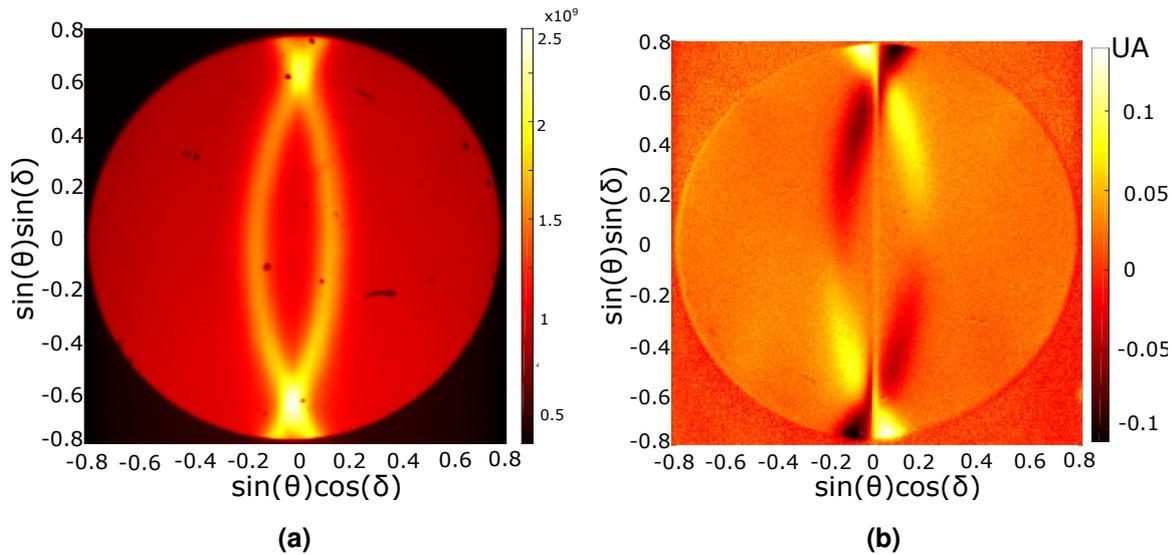


FIGURE 4.19 – Mesure des paramètres S_0 (a) et $\frac{S_3}{S_0}$ (b) dans le plan de Fourier de l'objectif de collection.

Les composantes S_0 et $\frac{S_3}{S_0}$ pour chaque angle d'émission du réseau de période $p = 450$ nm, sont représentées dans la figure 4.19. La mesure du paramètre S_0 est en réalité la mesure de l'intensité totale par le système, c'est pourquoi la mesure de la figure 4.19a est la même que celle dans la figure 4.16b.

Nous constatons pour $\frac{S_3}{S_0}$ que d'une part, il y a une différenciation entre émission de lumière polarisée CR et émission de lumière polarisée CG pour des angles

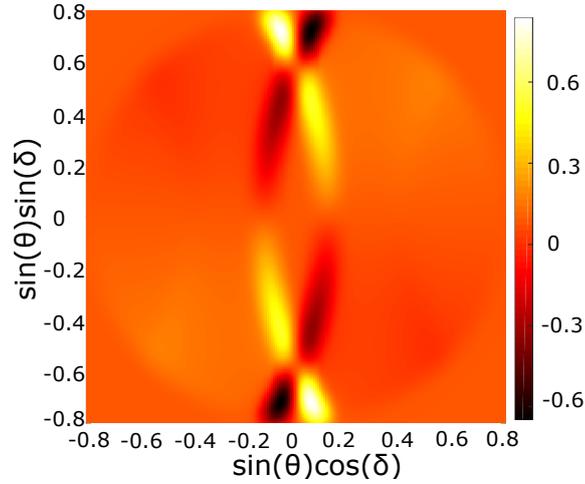


FIGURE 4.20 – Resultat du calcul du paramètre $\frac{S_3}{S_0}$ dans le plan de Fourier

s'éloignant de la normale à l'échantillon. D'autre part, pour $k_y = 0$, $\frac{S_3}{S_0} = 0$. Cela veut dire que l'émission de lumière dans le plan perpendiculaire au réseau n'est pas polarisée circulairement. Nous comprenons cela avec des arguments de symétries : le réseau est ici une succession de barres verticales émettant préférentiellement un champ polarisé linéairement, dans la direction de ces barres. Ainsi, si l'on se place dans le plan perpendiculaire aux barres, il y a une symétrie axiale selon l'axe des barres, et il est donc impossible que la lumière émise soit plutôt polarisée CD que CG, ou l'inverse.

Enfin dans la figure 4.20, nous présentons notre simulation du paramètre $\frac{S_3}{S_0}$ dans le plan de Fourier. Pour ce faire, nous avons fait comme dans la partie 3.A.2, en imposant une polarisation CR ou CG aux ondes planes incidentes, et en calculant l'absorption dans le système.

Nous constatons que le résultat de la simulation de $\frac{S_3}{S_0}$ est très fidèle à la mesure expérimentale de ce paramètre $\frac{S_3}{S_0}$. Cela confirme la validité de notre modèle pour décrire la polarisation d'émission dans différentes direction d'un tel système.

Résumé

Dans ce chapitre, nous avons appliqué le modèle de Kirchhoff généralisé afin de retrouver les propriétés particulières en directivité, polarisation et en spectre d'émission d'un système composé d'une couche de BQs structurée par un réseau. Pour appliquer ce modèle, nous avons tout d'abord identifié le mode guidé comme jouant le rôle de cavité, et montré que l'assemblée de BQs, une fois thermalisée, se comportait comme une couche homogène de température T et de potentiel chimique de radiation μ . En appliquant le modèle de Kirchhoff généralisé, nous avons pu rendre compte du décalage spectral entre le maximum d'émission du système et le pic d'absorption des BQs. Ce décalage serait explicable sans le modèle de Kirchhoff généralisé à condition de prendre en compte le décalage de Stokes et la modification d'indice de la structure par la pompe. Enfin, nous avons montré que la directivité et la polarisation d'émission de ce système étaient différentes de celles d'une couche non structurée de BQs .

Bilan et perspectives

Bilan de la thèse Nous nous sommes proposés dans cette thèse de modéliser l'émission de lumière d'assemblées d'émetteurs en cavité afin de pouvoir réaliser de nouvelles sources de lumière dont les propriétés de directivité, de polarisation et de spectre d'émission sont contrôlées. Nous avons tout d'abord introduit un nouveau cadre théorique, le modèle de Kirchhoff généralisé, permettant de modéliser l'émission de lumière d'un tel système. Dans ce modèle, nous assimilons l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs à l'émission de lumière d'une couche de matière condensée, à condition que les processus de thermalisations des électrons dans le système soient plus rapides que les processus de recombinaison radiatifs. Ce modèle prend en compte l'interaction entre la lumière émise par les émetteurs et le résonateur, et permet de montrer que la puissance émise par le système dans son ensemble à une fréquence, dans une direction et dans une polarisation donnée est le produit de l'absorptivité et d'une fonction de Planck caractérisée par la température T du système et le potentiel chimique de radiation μ . Ainsi, pour concevoir des sources de lumière dont les propriétés d'émission sont contrôlées à partir d'une assemblée d'émetteur en cavité, nous avons maximisé l'absorptivité dans les émetteurs choisis en jouant sur la géométrie et la composition de la cavité.

Le premier système auquel nous nous sommes intéressés est une assemblée de nano-plaquettes déposée sur une couche d'or. Les nano-plaquettes sont des nanocristaux colloïdaux découverts récemment, présentant une meilleure pureté spectrale que les boîtes quantiques. Nous avons réalisé des mesures de réflectivité du système, et avons observé 2 branches résonantes qui s'anticroisent, qui sont la signature indirecte d'un couplage fort entre les nano-plaquettes et le plasmon propagatif à l'interface or/nano-plaquettes. Nous avons vu que du fait de ce couplage fort, l'absorptivité dans les nano-plaquettes est non seulement plus grande, mais qu'elle est spectralement et angulairement différente de l'absorptivité dans une simple couche de nano-plaquettes, et qu'il est possible d'accorder spectralement cette absorptivité en jouant sur l'intensité du couplage entre les nano-plaquettes et le plasmon.

Afin d'avoir un contrôle sur la direction et la polarisation d'émission de ce nou-

veau type de source de lumière, nous avons calculé l'absorptivité dans les mêmes nano-plaquettes, déposées cette fois sur un réseau d'or. Nous avons montré qu'il y a un lobe d'absorption dans les nano-plaquettes pour des ondes planes arrivant sur le système avec des angles d'incidences compris entre -33° et $+33^\circ$ et polarisées linéairement dans la même direction que les traits du réseau. Nous avons aussi mis en place un dispositif expérimental permettant de caractériser l'émission de lumière d'un tel système. Ce dispositif permet d'imager le plan focal arrière, ou plan de Fourier, d'un objectif de collection sur la caméra d'un spectromètre. Ce dispositif permet de mesurer les angles d'émission de notre source, son spectre, et sa polarisation d'émission.

Enfin, en appliquant le modèle de Kirchhoff généralisé, nous avons simulé l'émission de lumière d'un troisième système composé d'un réseau en boîtes quantiques. Le décalage spectral entre le pic d'émission du système et le pic d'absorption des boîtes quantiques seules est attribué au fait que c'est le spectre de corps noir qui est filtré par l'absorptivité du système. Cette formulation prend en compte deux effets distincts qui influent sur l'absorptivité :

- le décalage de Stokes observé entre l'émission et l'absorption intrinsèque d'un matériau
- la présence de résonances dans le résonateur.

Il est important de souligner que ces résonances dépendent de l'indice des matériaux et donc de l'intensité du pompage.

Perspectives Tout d'abord, la source composée d'une assemblée de nano-plaquettes sur un réseau d'or n'a pas été fabriquée. Nous devons donc dans un premier temps, réaliser les réseaux d'or par lithographie électronique, et déposer les nano-plaquettes sur les réseaux par enduction rotatoire, et dans un second temps, mesurer les directions d'émission, le spectre et la polarisation d'émission de ce système.

Nous nous sommes limités à l'étude de systèmes avec des résonateurs simples (couche d'or, réseau 1D d'or). Dans un premier temps, il serait intéressant de remplacer l'or par de l'argent car ce métal absorbe moins aux longueurs d'onde du pic d'absorption des nano-plaquettes utilisées. Ainsi, une moins grande partie de la lumière émise par les nano-plaquettes serait susceptible d'être absorbée par le métal : la source serait plus brillante. Dans un second temps, il serait intéressant d'utiliser des réseaux 2D afin d'avoir des degrés de liberté supplémentaires pour contrôler les angles d'émission du système. Un réseau 2D avec des motifs chiraux pourraient aussi

permettre de concevoir des sources dont la lumière émise serait polarisée circulairement.

Il serait aussi intéressant de vérifier la validité du modèle pour un faible nombre d'émetteurs en mesurant des spectres d'émission pour différents systèmes en changeant la densité d'émetteurs d'un système à l'autre.

Enfin, nous pensons que ce modèle peut prédire l'apparition de condensat de Bose-Einstein de photons, il serait intéressant de le vérifier en l'appliquant par exemple au système de Weitz [KLAERS et al. 2010].

Bibliographie

- [1] M. AGIO et A. ALÙ, *Optical Antennas*, en, Google-Books-ID : V7shAwAAQBAJ (Cambridge University Press, jan. 2013).
- [2] A. P. ALIVISATOS, « Semiconductor Clusters, Nanocrystals, and Quantum Dots », en, *Science* **271**, Publisher: American Association for the Advancement of Science Section: Articles, 933-937 (1996).
- [3] A. CARATTINO, M. CALDAROLA et M. ORRIT, « Gold Nanoparticles as Absolute Nanothermometers », *Nano Lett.* **18**, 874-880 (2018).
- [4] V. L. COLVIN, M. C. SCHLAMP et A. P. ALIVISATOS, « Light-emitting diodes made from cadmium selenide nanocrystals and a semiconducting polymer », en, *Nature* **370**, Number: 6488 Publisher: Nature Publishing Group, 354-357 (1994).
- [5] A. G. CURTO, G. VOLPE, T. H. TAMINIAU, M. P. KREUZER, R. QUIDANT et N. F. v. HULST, « Unidirectional Emission of a Quantum Dot Coupled to a Nanoantenna », en, *Science* **329**, Publisher: American Association for the Advancement of Science Section: Report, 930-933 (2010).
- [6] E. DE LEO, A. COCINA, P. TIWARI, L. V. POULIKAKOS, P. MARQUÉS-GALLEGO, B. le FEBER, D. J. NORRIS et F. PRINS, « Polarization Multiplexing of Fluorescent Emission Using Multiresonant Plasmonic Antennas », *ACS Nano* **11**, Publisher: American Chemical Society, 12167-12173 (2017).
- [7] L. C. FLATTEN, S. CHRISTODOULOU, R. K. PATEL, A. BUCCHERI, D. M. COLES, B. P. L. REID, R. A. TAYLOR, I. MOREELS et J. M. SMITH, « Strong Exciton–Photon Coupling with Colloidal Nanoplatelets in an Open Microcavity », *Nano Letters* **16**, Publisher: American Chemical Society, 7137-7141 (2016).
- [8] J. GALLEGRO, D. PANDEY, W. ALT, T. MACHA, M. MARTINEZ-DORANTES et D. MESCHÉDE, « Purcell-enhanced single-photon emission from an atom in a fiber-based cavity », EN, in *Conference on Lasers and Electro-Optics* (2018), paper FM2H.3 (mai 2018), FM2H.3.
- [9] P. GOY, J. M. RAIMOND, M. GROSS et S. HAROCHE, « Observation of Cavity-Enhanced Single-Atom Spontaneous Emission », *Physical Review Letters* **50**, Publisher: American Physical Society, 1903-1906 (1983).

- [10] J.-J. GREFFET, « Nanoantennas for Light Emission », en, *Science* **308**, Publisher: American Association for the Advancement of Science Section: Perspective, 1561-1563 (2005).
- [11] J.-J. GREFFET, P. BOUCHON, G. BRUCOLI et F. MARQUIER, « Light Emission by Nonequilibrium Bodies : Local Kirchhoff Law », *Phys. Rev. X* **8**, 021008 (2018).
- [12] J.-J. GREFFET, R. CARMINATI, K. JOULAIN, J.-P. MULET, S. MAINGUY et Y. CHEN, « Coherent emission of light by thermal sources », *Nature* **416**, 61-64 (2002).
- [13] G. GRYNBERG, A. ASPECT et C. FABRE, *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*, fr, ISBN : 9782729857783 Publisher : Ellipses, 1997.
- [14] R. G. HULET, E. S. HILFER et D. KLEPPNER, « Inhibited Spontaneous Emission by a Rydberg Atom », *Physical Review Letters* **55**, 2137-2140 (1985).
- [15] S. ITHURRIA, M. D. TESSIER, B. MAHLER, R. P. S. M. LOBO, B. DUBERTRET et A. L. EFROS, « Colloidal nanoplatelets with two-dimensional electronic structure », en, *Nature Materials* **10**, Number: 12 Publisher: Nature Publishing Group, 936-941 (2011).
- [16] K. JOULAIN, J.-P. MULET, F. MARQUIER, R. CARMINATI et J.-J. GREFFET, « Surface electromagnetic waves thermally excited : radiative heat transfer, coherence properties and casimir forces revisited in the near field », *Surface Science Reports* **57**, 59-112 (2005).
- [17] J. K. KATAHARA et H. W. HILLHOUSE, « Quasi-Fermi level splitting and sub-bandgap absorptivity from semiconductor photoluminescence », en, *Journal of Applied Physics* **116**, Publisher: AIP Publishing LLC/AIP Publishing, 173504 (2014).
- [18] G. KIRCHHOFF, « Über das Verhältnis zwischen dem Emissionsvermögen und dem Absorptionsvermögen der Körper für Wärme und Licht », de, in *Von Kirchhoff bis Planck: Theorie der Wärmestrahlung in historisch-kritischer Darstellung*, sous la dir. de H.-G. SCHÖPF, Reihe Wissenschaft (Vieweg+Teubner Verlag, Wiesbaden, 1978), p. 131-151.
- [19] J. KLAERS, J. SCHMITT, F. VEWINGER et M. WEITZ, « Bose–Einstein condensation of photons in an optical microcavity », en, *Nature* **468**, Number: 7323 Publisher: Nature Publishing Group, 545-548 (2010).

-
- [20] P. KOLCHIN, N. PHOLCHAI, M. H. MIKKELSEN, J. OH, S. OTA, M. S. ISLAM, X. YIN et X. ZHANG, « High Purcell Factor Due To Coupling of a Single Emitter to a Dielectric Slot Waveguide », *Nano Letters* **15**, 464-468 (2015).
- [21] E. KRETSCHMANN et H. RAETHER, « Notizen : Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light », en, *Zeitschrift für Naturforschung A* **23**, Publisher: De Gruyter Section: Zeitschrift für Naturforschung A, 2135-2136 (1968).
- [22] M. LANDI, J. ZHAO, W. E. PRATHER, Y. WU et L. ZHANG, « Acoustic Purcell Effect for Enhanced Emission », *Physical Review Letters* **120**, Publisher: American Physical Society, 114301 (2018).
- [23] G. LOZANO, D. J. LOUWERS, S. R. RODRÍGUEZ, S. MURAI, O. T. JANSEN, M. A. VERSCHUUREN et J. GÓMEZ RIVAS, « Plasmonics for solid-state lighting : enhanced excitation and directional emission of highly efficient light sources », en, *Light: Science & Applications* **2**, Number: 5 Publisher: Nature Publishing Group, e66-e66 (2013).
- [24] B. LUK'YANCHUK, N. I. ZHELUDEV, S. A. MAIER, N. J. HALAS, P. NORDLANDER, H. GIESSEN et C. T. CHONG, « The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials », en, *Nature Materials* **9**, Number: 9 Publisher: Nature Publishing Group, 707-715 (2010).
- [25] D. A. B. MILLER, D. S. CHEMLA, T. C. DAMEN, A. C. GOSSARD, W. WIEGMANN, T. H. WOOD et C. A. BURRUS, « Electric field dependence of optical absorption near the band gap of quantum-well structures », *Physical Review B* **32**, Publisher: American Physical Society, 1043-1060 (1985).
- [26] M. G. MOHARAM et T. K. GAYLORD, « Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction », EN, *JOSA* **71**, Publisher: Optical Society of America, 811-818 (1981).
- [27] A. MOKHTARI, A. CHEBIRA et J. CHESNOY, « Subpicosecond fluorescence dynamics of dye molecules », EN, *JOSA B* **7**, Publisher: Optical Society of America, 1551-1557 (1990).
- [28] M. MUNSCH, A. MOSSET, A. AUFFÈVES, S. SEIDELIN, J. P. POIZAT, J.-M. GÉRARD, A. LEMAÎTRE, I. SAGNES et P. SENELLART, « Continuous-wave versus time-resolved measurements of Purcell factors for quantum dots in semiconductor microcavities », *Physical Review B* **80**, 115312 (2009).

- [29] C. B. MURRAY, D. J. NORRIS et M. G. BAWENDI, « Synthesis and characterization of nearly monodisperse CdE (E = sulfur, selenium, tellurium) semiconductor nanocrystallites », *Journal of the American Chemical Society* **115**, Publisher: American Chemical Society, 8706-8715 (1993).
- [30] R. OHTA, Y. OTA, M. NOMURA, N. KUMAGAI, S. ISHIDA, S. IWAMOTO et Y. ARAKAWA, « Strong coupling between a photonic crystal nanobeam cavity and a single quantum dot », *Applied Physics Letters* **98**, Publisher: American Institute of Physics, 173104 (2011).
- [31] R. L. OLMON, B. SLOVICK, T. W. JOHNSON, D. SHELTON, S.-H. OH, G. D. BOREMAN et M. B. RASCHKE, « Optical dielectric function of gold », *Physical Review B* **86**, Publisher: American Physical Society, 235147 (2012).
- [32] F. PRINS, D. K. KIM, J. CUI, E. DE LEO, L. L. SPIEGEL, K. M. MCPeAK et D. J. NORRIS, « Direct Patterning of Colloidal Quantum-Dot Thin Films for Enhanced and Spectrally Selective Out-Coupling of Emission », *Nano Letters* **17**, Publisher: American Chemical Society, 1319-1325 (2017).
- [33] E. M. PURCELL, « Spontaneous Emission Probabilities at Radio Frequencies », en, in *Confined Electrons and Photons: New Physics and Applications*, sous la dir. d'E. BURSTEIN et C. WEISBUCH, NATO ASI Series (Springer US, Boston, MA, 1995), p. 839-839.
- [34] S. M. RYTOV, *Theory of Electric Fluctuations and Thermal Radiation*, en, Google-Books-ID : IM_vxAEACAAJ (Air Force Cambridge Research Center, 1959).
- [35] I. SHLESINGER, H. MONIN, J. MOREAU, J.-P. HUGONIN, M. DUFOUR, S. ITHURRIA, B. VEST et J.-J. GREFFET, « Strong Coupling of Nanoplatelets and Surface Plasmons on a Gold Surface », *ACS Photonics* **6**, Publisher: American Chemical Society, 2643-2648 (2019).
- [36] S. M. THON, M. T. RAKHER, H. KIM, J. GUDAT, W. T. M. IRVINE, P. M. PETROFF et D. BOUWMEESTER, « Strong coupling through optical positioning of a quantum dot in a photonic crystal cavity », *Applied Physics Letters* **94**, Publisher: American Institute of Physics, 111115 (2009).
- [37] Q. LE-VAN, X. LE ROUX, A. AASSIME et A. DEGIRON, « Electrically driven optical metamaterials », en, *Nature Communications* **7**, Number: 1 Publisher: Nature Publishing Group, 12017 (2016).

- [38] H. WANG, A. AASSIME, X. LE ROUX, N. J. SCHILDER, J.-J. GREFFET et A. DEGIRON, « Revisiting the Role of Metallic Antennas to Control Light Emission by Lead Salt Nanocrystal Assemblies », *Physical Review Applied* **10**, Publisher: American Physical Society, 034042 (2018).
- [39] C. WEISBUCH, M. NISHIOKA, A. ISHIKAWA et Y. ARAKAWA, « Observation of the coupled exciton-photon mode splitting in a semiconductor quantum microcavity », *Physical Review Letters* **69**, Publisher: American Physical Society, 3314-3317 (1992).
- [40] P. WURFEL, « The chemical potential of radiation », en, *Journal of Physics C: Solid State Physics* **15**, Publisher: IOP Publishing, 3967-3985 (1982).

Table des matières

1	Introduction au contrôle de l'émission spontanée par des structures résonantes	1
I.	Émission de lumière par un émetteur unique	3
A.	Émetteur unique dans le vide	4
B.	Émetteur unique dans un environnement	7
II.	Émission de lumière par une assemblée d'émetteurs thermalisés en cavité	11
A.	Émetteurs thermalisés	11
B.	Émission de lumière en cavité	15
III.	Vers une ingénierie de l'émission de lumière	22
A.	Conception de sources	22
B.	Au-delà de l'émission par un émetteur unique	23
	Résumé	27
2	Couplage fort	29
I.	Émetteurs et résonateur	29
A.	Émetteurs choisis : les nano-plaquettes	29
B.	Résonateur choisi : le plasmon de surface	31
II.	Étude expérimentale	34
A.	Nano-fabrication	35
B.	Perspectives	43
	Résumé	44
3	Étude de la photoluminescence d'une assemblée de nano-plaquettes couplée à un mode plasmonique	45
I.	Conception de la source	45
A.	Cahier des charges et solutions retenues	46
B.	Dimensionnement de la source	50
II.	Dispositif expérimental et résultats de mesure	55
A.	Dispositif expérimental	56

Résumé	63
4 Étude de la photoluminescence d'une assemblée de boîtes quantiques couplée à un mode guidé	65
I. Système d'étude	65
A. Géométrie du réseau	66
B. Boîtes quantiques	66
C. Nanofabrication	67
II. Etude expérimentale de l'émission de lumière du système	67
A. Résultats expérimentaux	67
B. Discussion	73
III. Étude de l'intensité dans le plan de Fourier	83
A. Contrôle de la directivité	84
B. Contrôle de la polarisation	89
Résumé	92
Bilan et perspectives	93
Bibliographie	97
Table des matières	103

Titre : Contrôle de l'émission de lumière par une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à un résonateur

Mots clés : nanophotonique, émission spontanée, plasmonique, boîtes quantiques, nanoplaquettes

Résumé : C'est en 1946 que Purcell découvre que le taux d'émission spontanée d'un émetteur peut être modifié par son environnement. Depuis, plusieurs groupes de recherches ont cherché à placer toutes sortes d'émetteur (atomes, boîtes quantiques, molécules de colorant...) dans toutes sortes de cavité (cavité Fabry-Perot, cavité plasmonique, guide d'ondes...) afin de réduire le temps de vie de ces émetteurs. Par la suite, il a été compris que plusieurs des propriétés d'émission d'un émetteur tel que la directivité d'émission, ou encore la polarisation d'émission peuvent être affectées par l'environnement de l'émetteur.

Il est donc possible de contrôler les propriétés d'émission de lumière d'un émetteur unique en contrôlant son environnement, mais est-il possible d'appliquer les mêmes concepts non pas à un émetteur unique mais à une assemblée d'émetteurs ? Peut-on réaliser des sources de lumières dont la direction, la polarisation ou le spectre d'émission serait contrôlé.

L'objectif de cette thèse est de concevoir de nouvelles sources de lumières composées d'une assemblée thermalisée d'émetteurs couplée à un résonateur, dont les propriétés d'émission sont contrôlées.

Dans le cadre de ma thèse, nous avons utilisé un nouveau modèle théorique développé dans notre groupe de recherche, permettant de modéliser l'émission de lumière d'une assemblée d'émetteurs thermalisés en cavité. Nous avons modélisé l'émission de lumière d'une assemblée de nano-plaquettes couplée à un plasmon propagatif, ainsi que l'émission de lumière d'une assemblée de boîtes quantiques couplée à un mode diélectrique, en appliquant ce modèle. Nous avons enfin utilisé ce nouveau cadre théorique pour concevoir une source de lumière directive et polarisée, composée d'une assemblée de nano-plaquettes sur un réseau d'or.

Title: Control of light emission by a thermalized assembly of emitters coupled to a resonator

Keywords: Nanophotonic, quantum dots, nanoplatelets, plasmonic, spontaneous emission

Abstract: It was in 1946 that Purcell discovered that the spontaneous emission rate of an emitter can be modified by its environment. Since then, several research groups have sought to place all kinds of emitters (atoms, quantum boxes, dye molecules...) in all kinds of cavities (Fabry-Perot cavity, plasmonic cavity, waveguide...) in order to reduce the lifetime of these emitters. Later, it was understood that many of the emission properties of an emitter such as the emission directivity, or the emission polarization can be affected by the environment of the emitter.

It is therefore possible to control the light-emitting properties of a single emitter by controlling its environment, but is it possible to apply the same concepts not to a single emitter but to an assembly of emitters? Is it possible to realize light sources whose direction, polarization or emission spectrum would be controlled?

The objective of this thesis is to design new light sources composed of a thermalized assembly of emitters coupled to a resonator, whose emission properties are controlled.

In the framework of my thesis, we used a new theoretical model developed in our research group, allowing us to model the light emission of an assembly of thermalized emitters in a cavity. We have modeled the light emission of an assembly of nano-platelets coupled to a propagative plasmon, as well as the light emission of a quantum box assembly coupled to a dielectric mode, by applying this model. We finally used this new theoretical framework to design a polarized and directive light source, composed of an assembly of nano-plates on a gold lattice.

